N° D'ORDRE
253

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

PAR

Claude LASSEUR

LE DOSAGE DES RADIONUCLEIDES PAR LA METHODE DES PRELEVEMENTS SUCCESSIFS DE COURTE DUREE

APPLICATION A LA MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS LES ATMOSPHERES LIBRES ET CONDITIONNEES

Soutenue le 8 janvier 1970 devant la Commission d'Examen

MM. D. BLANC — Président

J. FONTAN
H. JOFFRE — Examinateurs
J. PRADEL

N° D'ORDRE
253

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

PAR

Claude LASSEUR

LE DOSAGE DES RADIONUCLEIDES
PAR LA METHODE DES PRELEVEMENTS SUCCESSIFS DE COURTE DUREE

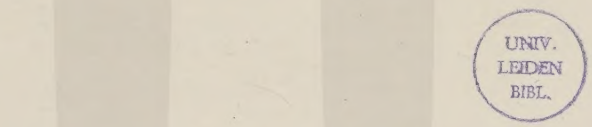
APPLICATION A LA MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE
DES DESCENDANTS DU RADON DANS LES ATMOSPHERES LIBRES ET CONDITIONNEES

Soutenue le 8 janvier 1970 devant la Commission d'Examen

MM. D. BLANC — Président

J. FONTAN
H. JOFFRE — Examinateurs
J. PRADEL

Digitized by the Internet Archive
in 2026



https://archive.org/details/IA41543906_0010

UNIVERSITE DE TOULOUSE FACULTE DES SCIENCES

PERSONNEL, ADMINISTRATION

M. MATHIS : Président du Conseil Transitoire de Gestion
M. AGID : Assesseur
M. LELUBRE : Assesseur

HONORARIAT

M. CAPDECOMME	: Doyen honoraire, Recteur honoraire
M. DELTHEIL	: Recteur honoraire, Doyen honoraire Professeur honoraire
M. DUPOUY	: Doyen honoraire, Membre de l'Institut Directeur général honoraire du C.N.R.S.
M. DURAND	: Doyen honoraire
M. FOUCHE	: Professeur honoraire
M. GAUSSENS	: Professeur honoraire, correspondant de l'Institut
M. JACQUES	: Professeur honoraire
M. MIGNONAC	: Professeur honoraire
M. MORQUER	: Professeur honoraire, correspondant de l'Institut
M. VANDEL	: Professeur honoraire, Membre de L'Institut
M. TEISSIE-SOLIER	: Professeur honoraire.

PROFESSEURS

M. ESCANDE	: Mécanique des Fluides, Membre de l'Institut
M. DUPOUY	: Physique, Membre de l'Institut
M. CASTERAS	: Géologie, Correspondant de l'Institut
M. BEDOS	: Chimie
M. CAPDECOMME	: Minéralogie
M. DUPIN	: Radioélectricité
M. NOUVEL	: Biologie générale
M. GALLAIS	: Chimie, Correspondant de l'Institut
M. DURAND	: Physique
M. FERT	: Physique
M. DIEHL	: Agronomie

M. GARDY	: Génie Chimique
M. LESBRE	: Chimie Organique
M. BRUNEL	: Physiologie Végétale
M. HURON	: Mathématiques Appliquées
M. MARGULIS	: Pédologie
M. TRICHE	: Chimie Analytique et spectrographique
M. LEDOUX	: Zoologie appliquée
M. RIVALS	: Agriculture
M. PERRIER	: Physique
M. MATHIS	: Chimie
M. ORLIAC	: Géochimie et Minéralogie
M. LAFOURCADE	: Physique
M. ANGELIER	: Zoologie
Melle de FERRE	: Botanique
M. FARRAN	: MInéralogie et Géotechnique
M. LAUDET	: Physique théorique et Calcul numérique
M. SERFATY	: Biologie animale
M. NOUGARO	: Hydraulique générale et appliquée
M. LAGASSE	: Electrotechnique
M. VOIGT	: Chimie Minérale
M. LEREDGE	: Botanique
M. LELUBRE	: Géologie
M. TROCHAIN	: Botanique
M. MASDUPUY	: Chimie
M. LALAGUE	: Mathématiques générales
M. DESSENS	:Physique du Globe, correspondant de l'Institut
M. BOUIGUE	: Astronomie
M. COUCHET	: Physique
M. LEJEUNE	: Chimie
M. LASCOMBES	: Botanique
M. ASSELINEAU	: Chimie biologique
M. MAURET	: Chimie Systématique
M. AGID	: Physiologie
M. MONTANT	: Cryptogamie
M. GAUTIER	: Physique
M. CRUMEYROLLE	: Mathématiques
M. GOURINARD	: Géologie
M. PULOU	: Minéralogie
M. CAMBOU	: Physique spatiale
M. MIQUEL	: Chimie
M. BLANC	: Physique Nucléaire
M. BIREBENT	: Electronique appliquée

M. LACOSTE	: Electrotechnique
M. THIBAULT	: Mécanique rationnelle et appliquée
M. MONTEL	: Chimie physique et Electrochimie
M. MASCART	: Mathématiques
M. MEDIONI	: Psychophysiologie
M. THIRRIOT	: Hydrodynamique E.N.S.E.I.H.T.
M. BRENON	: Géologie
M. LAFON	: Calcul différentiel et intégral
M. RAYNAUD P.	: Physiologie Animale
M. ZALTA	: Chimie Biologique
M. SEVELY	: Electrotechnique
M. POMMIEZ	: Mathématiques
M. REY	: Biologie Végétale
M. COULOMB	: Physique

PROFESSEURS ASSOCIES

M. SAKUMA
M. MANSOUR

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. HAMANT	: Botanique
Mme BRUNEL	: Physiologie Végétale
Melle BERDUCOU	: Physiologie Végétale
M. MARONI	: Chimie
M. SECONDAT	: Zootechnie et Hydrobiologie appliquée
M. PICCA	: Physique
M. MERIC	: Mathématiques appliquées
M. BEETSCHEN	: Biologie Générale
Mme LECAL	: Zoologie
M. BUGAREL	: Génie Chimique
M. MIROUSE	: Géologie
M. PILOD	: Physique
M. LARROQUE	: Physique
M. BARRANS	: Chimie
M. TRINQUIER	: Physique
M. GRUAT	: Mécaniques des Fluides (hydraulique)
Mme LAFON	: Mathématiques
Melle LAPEYRE	: Mathématiques (Informatique)

M. DAT	: Mécanique des Fluides
M. JEANNIN	: Chimie Minérale
M. BERTRAND	: Chimie
M. SATGE	: Chimie Organique
M. DESQ	: Mathématiques
M. MAHENC	: Chimie
M. LATTES	: Chimie
M. ROCARD	: Electronique
M. DEGEILH	: Physique
M. FALLOT	: Biologie Végétale, (viticulture et arboriculture).
M. POILBLANC	: Chimie
M. TOUZE	: Physiologie végétale
M. FRASNAY	: Mathématiques
M. CASSAGNAU	: Zoologie
M. GUERIN	: Mathématiques

MAITRES DE CONFERENCES

M. BLANCHARD	: Mathématiques
M. COULON	: Physique Industrielle
M. HOFFMANN	: Electronique
M. BITSCH	: Zoologie
M. FONTAN	: Physique Nucléaire
M. PESCIA	: Physique
M. SICARD	: Biologie génétique
M. CAUSSINUS	: Mathématiques appliquées
M. de LOTH	: Chimie Physique
M. MARTY	: Physique Industrielle
M. BAUDRAS	: Chimie Biologique
M. DURAND Ph.	: Physique
M. LEFEUVRE	: Electronique E.N.S.EI.H.T.
M. SOUQUET	: Géologie
M. SAPORTE	: Physique
M. ATTEIA	: Mathématiques
M. ENJALBERT	: Chimie
M. IMBERT	: Psychophysiologie

M. SCHNEIDER : Biologie cellulaire
M. ANGELINO : Génie Chimique
M. DABOSI : E.N.S.C.
M. ETTINGER : Mathématiques
M. CALVET : Mécanique des Fluides (E.N.S.EI.H.T.)
M. PAGANI : Physique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

M. PUN
M. JEAN
M. PARKS

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. BEAUFILS : Informatique
M. CASTAGNETTO L. : Mathématiques E.N.S.E.I.H.T.
M. DARROZES : Mécaniques
M. OLIVIER : Mathématiques

PERSONNEL DE LA FACULTE AFFECRE A L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. CASSIGNOL : Génie Electrique
M. COLETTE : Physique

MAITRES DE CONFERENCES

M. FAGET : Physique
M. TRUCHASSON : Mécanique
M. SCHUTTLER : Physique
M. ROQUES : Chimie
M. DRILLIAT : Chimie
M. MIRA : Génie Electrique
M. GRATELOUP : Génie Electrique
M. LETURCQ : Génie Electrique

M. SIRIEYS : Génie civil

M. MASO : Génie civil

M. DURAND Gilbert : Chimie

M. CARRARA : Physique

M. CUPPENS : Mathématiques

PERSONNEL AFFECTE A L'INSTITUT UNIVERSITAIRE DE TECHNOLOGIE DE TOULOUSE

MAITRES DE CONFERENCE

M. MARTIN : Génie Electrique

M. THENOZ : Minéralogie

M. PERENNOU : Informatique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. REY : Génie Electrique

SECRETARIAT

M. PRINEAU : Conseiller Administratif des Services Universitaires.

M. SCHNEIDER : Biologie cellulaire
M. ANGELINO : Génie Chimique
M. DABOSI : E.N.S.C.
M. ETTINGER : Mathématiques
M. CALVET : Mécanique des Fluides (E.N.S.EI.H.T.)
M. PAGANI : Physique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

M. PUN
M. JEAN
M. PARKS

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. BEAUFILS : Informatique
M. CASTAGNETTO L. : Mathématiques E.N.S.E.I.H.T.
M. DARROZES : Mécaniques
M. OLIVIER : Mathématiques

PERSONNEL DE LA FACULTE AFFECRE A L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. CASSIGNOL : Génie Electrique
M. COLETTE : Physique

MAITRES DE CONFERENCES

M. FAGET : Physique
M. TRUCHASSON : Mécanique
M. SCHUTTLER : Physique
M. ROQUES : Chimie
M. DRILLIAT : Chimie
M. MIRA : Génie Electrique
M. GRATELOUP : Génie Electrique
M. LETURCQ : Génie Electrique

M. SIRIEYS : Génie civil

M. MASO : Génie civil

M. DURAND Gilbert : Chimie

M. CARRARA : Physique

M. CUPPENS : Mathématiques

PERSONNEL AFFECTE A L'INSTITUT UNIVERSITAIRE DE TECHNOLOGIE DE TOULOUSE

MAITRES DE CONFERENCE

M. MARTIN : Génie Electrique

M. THENOZ : Minéralogie

M. PERENNOU : Informatique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. REY : Génie Electrique

SECRETARIAT

M. PRINEAU : Conseiller Administratif des Services Universitaires.

A ma femme,
A mes enfants,
A ma famille.

REMERCIEMENTS

Monsieur le Professeur D. BLANC, Directeur du Centre de Physique Atomique et Nucléaire de Toulouse a bien voulu accepter de diriger mes études et patronner mon travail. Je le prie d'accepter mes remerciements très respectueux.

Mes remerciements vont également à M. FONTAN qui, tout au long de ce travail, m'a manifesté les preuves de son bienveillant intérêt et me fait l'honneur de siéger à mon jury.

Je remercie M. PRADEL, Chef du Service d'Etudes Techniques de Protection, qui me fait également l'honneur de venir siéger à mon jury.

Je témoigne ma respectueuse gratitude à M. JOFFRE, Chef du Service de Protection contre les Radiations du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, qui a mis à ma disposition tous les moyens nécessaires pour accomplir ce travail. Je le remercie encore pour l'intérêt constant qu'il a porté à mon travail.

Je remercie aussi MM. SKLAVENITIS et CHRETIEN , Chefs de Groupe au Service de Protection contre les Radiations du CEN-SACLAY, qui m'ont accordé un soutien constant dans l'accomplissement de mon travail.

Je tiens à témoigner ma gratitude à MM. DOUSSET et CLUCHET pour leur précieuse et amicale collaboration et leur soutien de tous les instants.

Mes remerciements vont aussi à M. MONET, responsable des stations de surveillance atmosphérique du CEN-SACLAY qui m'a aidé dans l'interprétation des phénomènes météorologiques.

J'exprime ma reconnaissance au Personnel du Service de Protection contre les Radiations du CEN-SACLAY qui, directement ou indirectement, m'a apporté un concours désintéressé et plus particulière-

ment MM. SIMOEN, ZERBIB et TABOT, à M. TONNELIER et Mme LEVY qui ont assuré la réalisation mécanique de l'appareil, à MM. ESPANEL et FERLICOT pour la réalisation d'une fraction des circuits électroniques et à M. MERLE qui s'est chargé de la programmation des spectres α par la méthode de Monte Carlo.

Je dois une mention particulière à MMe DESMARETZ et GUERIN pour leur contribution à mes recherches bibliographiques, à Mme ALLIO secrétaire, et à Mme VAN ELSTRAETE qui ont assuré la présentation matérielle de ce mémoire.

S O M M A I R E

INTRODUCTION

CHAPITRE 1 - METHODE DE MESURE ET ETUDE THEORIQUE DE LA FILIATION DU RADON SOUMISE A UN PRELEVEMENT SUR FILTRE OU MEMBRANE FIXE.

1 - Principe de mesure

2 - Equations générales d'une filiation

3 - Evolution de la filiation soumise à un prélèvement sur filtre ou membrane fixe.

3.1. Evolution de chaque descendant pendant le prélèvement

3.2. Décroissance, après le prélèvement, de l'activité de chaque descendant déposé sur le filtre.

4 - Calcul des activités déposées sur un filtre ou une membrane fixe.

4.1. Activité de la membrane à l'arrêt du prélèvement.

4.2. Activité sur la membrane après l'arrêt du prélèvement

4.3. Relations entre concentrations et facteurs de déséquilibre

CHAPITRE 2 - ETUDE DES MEMBRANES CAPILLAIRES

1 - Les difficultes de la mesure spectrale d'un radionucléïde α.

2 - Hypothèses de travail

3 - Conditions de mesure

4 - Pouvoir d'arrêt massique des particules α, fluctuations statistiques de la perte d'énergie et résolution électronique.

5 - Etude des membranes capillaires

5.1. Rappels de la théorie de la filtration par les membranes capillaires

5.2. Caractéristiques des membranes capillaires

5.3. Mesures expérimentales des caractéristiques des membranes capillaires.

6 - Etude de la pénétration des aérosols dans les membranes capillaires.

6.1. Détermination expérimentale du coefficient d'efficacité μ

6.2. Recherche du spectre théorique - Méthode de Monte Carlo

6.3. Rendement théorique de détection α.

6.4. Correction d'autoabsorption dans les membranes capillaires.

7 - Conclusion

CHAPITRE 3 - L'APPAREIL DE PRELEVEMENT ET SON ETALONNAGE

1 - Ensemble mécanique

1.1. Principe de la méthode de mesure

1.2. Impératifs de base conduisant à la conception de l'ensemble mécanique.

1.3. Composition de l'ensemble mécanique et fonctionnement des divers organes

2 - Ensemble électronique

2.1. Séparation du RaA et du RaC'

2.2. Sélection du RaB

2.3. Commande des mesures

2.4. Remarques

3 - Récapitulatif des caractéristiques de l'appareil

4 - Etalonnage de l'appareil

4.1. Etalonnage du détecteur α

4.2. Etalonnage du détecteur β

4.3. Rendement effectif de détection β applicable à RaB et RaC.

4.4. Corrections diverses

4.5. Etalonnage en énergie du seuil de séparation

5 - Sensibilité de l'appareil

5.1. Sensibilité théorique

5.2. Sensibilité pratique

CHAPITRE 4 - LE RADON ET LA FILIATION RADON-RaA

1 - Le dégagement du radon du sol et des matériaux

1.1. Méthode de mesure

1.2. Résultats des mesures
1.3. Conclusions

2 -Adsorption du gaz radon

3 -Etude du déséquilibre entre radon et RaA

3.1. Etude théorique
3.2. Etude expérimentale

4 -Conclusion

CHAPITRE 5 - VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS L'ATMOSPHERE PRES DU SOL

1 - Introduction

2 - Mesure de la concentration de chaque descendant - Déséquilibre

2.1. Lieu de prélèvement

2.2. Contrôle des mesures

2.3. Paramètres de prélèvement

2.4. Calcul des concentrations et des facteurs de déséquilibre. Précision des mesures..

3 - Concentration et déséquilibre dans l'atmosphère près du sol de chaque descendant solide du radon.

4 - Influence des mouvements de l'atmosphère

5 - Influence de la rugosité du sol -obstacles

6 - Influence des paramètres météorologiques locaux sur la concentration et le déséquilibre des descendants du radon

6.1. Humidité relative et température

6.2. Action des vents - Vitesse, amplitude, direction.

6.3. Autres paramètres météorologiques

7 - Discussion de nos mesures

8 - Conclusion

CHAPITRE 6 - VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS LES ATMOSPHERES CONDITIONNEES.

1 - Introduction

2 - Variations de la concentration et du déséquilibre de chaque descendant du radon dans un local ventilé et non filtré

3 - Variations de la concentration et du déséquilibre de chaque descendant dans une mine d'uranium.

3.1. Conditions de mesure

3.2. Résultats des mesures

3.3. Comparaison des résultats relatifs au déséquilibre de la filiation du radon

3.4. Incidence du type de membrane sur les résultats

3.5. Conclusion

4 - Mesure de la concentration et du déséquilibre de chaque descendant du radon dans un local ventilé et filtré.

4.1. Conditionnement du local

4.2. Etude théorique

4.3. Etude expérimentale

4.4. Conclusion

CONCLUSION GENERALE

Bibliographie

Annexes

1 - Tableaux relatifs à la filiation du radon

2 - Formulaire

3 - La perte d'énergie et le straggling des particules α dans la matière

4 - Résolution électronique des détecteurs à semi-conducteur

LE DOSAGE DES RADIONUCLEIDES PAR LA METHODE DES PRELEVEMENTS SUCCESSIFS DE COURTE DUREE APPLICATION A LA MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS LES ATMOSPHERES LIBRES ET CONDITIONNEES

INTRODUCTION

L'apparition de l'énergie nucléaire et des industries associées a nécessité l'étude et la mise au point de nouvelles techniques de mesure des gaz et aérosols radioactifs qui se trouvent en suspension dans l'atmosphère.

Cette contamination radioactive de l'air amène, par les poumons et les aliments, des radionucléïdes qui émettent leurs rayonnements dans l'organisme. Ils constituent, de ce fait, une source de dangers. Les retombées radioactives et les conséquences qui peuvent en résulter sont venues renforcer les nécessités d'une connaissance plus approfondie de la composante naturelle de l'activité de l'atmosphère.

Cette composante fut mise en évidence, pour la première fois, par ELSTER et GEITEL en 1901 [17]. La source se trouve localisée dans les roches du sol qui contiennent, en concentration variable, du radium et du thorium (tableau 1) [27] ainsi que dans les matériaux qui nous entourent.

Types de roches	^{216}Ra en $g.g^{-1}$ de sol x 10^{-12}	^{232}Th en $g.g^{-1}$ de sol x 10^{-6}
Roches ignées (valeur moyenne)	1,3	12
granits		
Amérique du Nord. Groenland.	1,6 ± 0,1	8,1
Finlande	4,7 ± 0,4	28 ± 2,4
Alpes	4,4 ± 0,7	33 ± 0,5
Basaltes		
Amérique du nord. Groenland, Grande Bretagne	0,96 ± 0,7	9,8 ± 0,8
Allemagne, France, Hongrie	1,3 ± 0,1	8,8 ± 1,0
Roches sédimentaires		
Grès	0,3 environ	
Calcaires	jusqu'à 1,5	1
Schistes alunifères de Suède	jusqu'à 120	0,6 à 1,2

Tableau 1 - Teneur en radium et thorium des diverses sortes de roches / 2 /

Chaque famille radioactive naturelle contient un isotope d'un même élément gazeux : l'émanation.

famille de l' $^{238}_{92}U$: le radon $^{222}_{86}Rn$

famille du $^{232}_{30}Th$: le thoron $^{220}_{86}Tn$

famille de l' $^{235}_{92}U$: l'actinon $^{219}_{86}An$

Ces éléments diffusent dans le sol, mais les particules solides issues de la désintégration des gaz semblent rester fixées sur les parois des pores du sol [3-4]. La fraction des gaz qui parvient à la surface se dégage, dans l'atmosphère, en proportions variables, selon l'état physique du sol et les conditions météorologiques. Par décroissance, ils donnent naissance aux descendants solides de filiation qui se fixent sur les poussières et aérosols en suspension dans l'atmosphère [5 - 6]. Gaz et descendants solides se trouvent soumis aux lois de la diffusion atmosphérique.

La composante radioactive naturelle constitue donc un "fond" qui souvent masque complètement les radionucléïdes artificiels à mesurer et dont les concentrations maximales admissibles (CMA) sont parfois très faibles (plutonium soluble , CMA = 2.10^{-12} $Ci.m^{-3}$).

Pour évaluer cette composante radioactive artificielle, il est nécessaire de procéder à une concentration préalable du ou des radionucléïdes à mesurer, au voisinage immédiat du détecteur de rayonnement. Dans ce but, de nombreux appareils de mesure de la contamination par les radionucléïdes artificiels ont été construits ces dernières années [7 - 8 - 9 - 10 - 11 - 12]. Chacun découle d'un principe différent ayant pour but d'éliminer, en tout ou partie, les effets de la composante radioactive naturelle dûs aux gaz radon et thoron et à leurs descendants solides à vie courte. Mais dans tous ces principes il est implicitement admis que les filiations radon et thoron sont en régime d'équilibre radioactif établi dans l'atmosphère.

Admettre l'équilibre radioactif des filiations radon et thoron revient à surestimer le bruit de fond ou à sous-estimer les concentrations atmosphériques. Ceci conduit également à fausser les notions de seuil d'alarme, notions très importantes en radioprotection. Les mêmes problèmes se retrouvent dans les locaux spéciaux ventilés et filtrés ou les ventilations maintiennent un déséquilibre quasi permanent de la filiation.

De nombreux auteurs ont signalé ou étudié le déséquilibre des filiations radon et thoron. O. TANAEVSKY et E. VASSY ont montré des accumulations de radon en atmosphère calme [13 - 14] ainsi que des déséquilibres même en présence d'une grande quantité d'aérosol neutre [15 - 16]. D'autres auteurs ont seulement signalé l'existence d'un déséquilibre entre le radon et son dépôt actif à vie courte [17 - 18 - 19]. Aucune évaluation n'a été faite.

J. FONTAN et ses collaborateurs ont mis en évidence, par la méthode de la chambre à désintégration, le déséquilibre existant entre les gaz radon et thoron et le dépôt actif à vie courte α ou β. Ils ne séparent pas chaque descendant [20 - 21 - 22 - 23]

Dans les mines les méthodes utilisées sont indirectes [24] ou très discontinues [25]. Le déséquilibre est évalué à partir de la courbe de décroissance du dépôt actif α correspondant (RaA + RaC'). Là encore il n'y a pas mesure séparée de chaque descendant.

Au cours de notre travail nous nous proposons d'étudier et de réaliser un appareil de prélèvement mettant en oeuvre une méthode de mesure, par prélèvements successifs de courte durée. L'appareil sera spécialisé pour l'étude de la filiation du radon. La concentration de chaque descendant solide à vie courte sera obtenue de façon quasi continue. Le déséquilibre éventuel s'en déduira à tout instant.

Le premier chapitre, après une présentation rapide du principe de notre méthode de mesure, est consacré à l'étude théorique de l'évolution de la filiation soumise à un prélèvement sur filtre ou membrane fixe. Les équations générales d'une filiation sont développées et appliquées à l'évolution sur filtre. Elles nous permettent de préciser les paramètres de prélèvement de l'appareil et nous conduisent au calcul des activités déposées sur le filtre ou la membrane fixe.

Il est impossible d'obtenir la concentration exacte, dans l'atmosphère, de chaque descendant du radon, si nous ne connaissons pas la fraction de l'activité déposée sur la membrane qui est perdue par suite de la pénétration de l'aérosol dans son épaisseur. La loi de répartition de l'activité dans la membrane étant connue, certains paramètres sont définis à partir des spectres expérimentaux. En utilisant ces paramètres, une méthode de Monte Carlo nous permet de déduire le spectre théorique correspondant et de le comparer au spectre expérimental. Le rendement de détection et la correction d'autoabsorption sont alors obtenus. Ce travail fait l'objet du chapitre 2.

Description, fonctionnement et étalonnage de l'appareil sont consignés dans le chapitre 3.

Le chapitre 4 est consacré à l'étude de l'état d'équilibre entre le radon et le RaA. Au préalable nous vérifions que le radon, lorsqu'il émane du sol et des matériaux, n'est pas accompagné de ses descendants.

La mesure et l'enregistrement, en continu, des concentrations et des facteurs de déséquilibre des descendants du radon dans l'atmosphère près du sol, et dans les atmosphères conditionnées, font l'objet des chapitres 5 et 6.

L'annexe 1 regroupe, dans des tableaux, les caractéristiques de la filiation du radon.

L'annexe 2 est un formulaire où sont regroupées toutes les formules théoriques d'évolution de la filiation sur une membrane, ainsi que les formules de calcul de l'activité déposée sur la membrane pour chaque descendant.

Enfin les annexes 3 et 4 regroupent les études sur le pouvoir d'arrêt des particules α dans la matière, les fluctuations statistiques de la perte d'énergie des particules α, et la résolution électronique du détecteur α. Ces études sont nécessaires pour la méthode de Monte Carlo.

CHAPITRE 1
METHODE DE MESURE ET ETUDE THEORIQUE DE LA FILIATION DU RADON SOUMISE A UN PRELEVEMENT SUR FILTRE OU MEMBRANE FIXE

1 - PRINCIPE DE LA MESURE

Procéder par prélèvements intermittents et de courte durée, sur bande de membrane millipore, des poussières et aérosols radioactifs en suspension dans l'atmosphère.

Ensuite, analyser et mesurer, par spectrométrie, les radionucléïdes émetteurs α (RaA et RaC'), par comptage classique les radionucléïdes émetteurs β (RaB et RaC), la séparation des deux derniers se faisant électroniquement à partir de la mesure α du RaC'.

Le détecteur α est un compteur à semi-conducteur du type barrière de surface, placé au-dessus de la membrane. Le détecteur β est un compteur Geïger-Müller à fenêtre, placé au-dessous de la membrane. La détection s'effectue à travers la trame.

2 - EQUATIONS GENERALES D'UNE FILIATION

Considérons l'unité de volume V où existe un phénomène de filiation radioactive, définie à un temps t par les nombres d'atomes N_1, N_2, N_3 ... N_n et telle que

$$1 \longrightarrow 2 \longrightarrow 3 \longrightarrow \ldots\ldots\ i \ \ldots\ldots$$

Supposons que, dans ce volume, le renouvellement et la disparition des atomes s'effectuent par radioactivité et par apport extérieur. Dans ces conditions :

soient

- n_1, n_2, n_3 ..... n_n ..... les nombres d'atomes apportés par unité de temps dans V

- $N_1(t)$, $N_2(t)$, $N_3(t)$ ..... $N_n(t)$ .....

les nombres d'atomes présents à l'instant t, il vient

$$dN_1(t) = n_1\,dt - \lambda_1 N_1(t)\,dt$$

$$dN_2(t) = n_2\,dt - \left[\lambda_2 N_2(t) - \lambda_1 N_1(t)\right]dt$$

$$dN_3(t) = n_3\,dt - \left[\lambda_3 N_3(t) - \lambda_2 N_2(t)\right]dt$$

$$\text{----------}$$

$$dN_n(t) = n_n\,dt - \left[\lambda_n N_n(t) - \lambda_{(n-1)} N_{(n-1)}(t)\right]dt$$

λ_1, λ_2, λ_3..... λ_n sont les constantes radioactives respectives des radionucléïdes 1, 2, 3, ... n. (voir tableau 2, annexe 1).

En désignant respectivement par $N_1(0)$, $N_2(0)$, $N_3(0)$ ... $N_n(0)$ les radionucléïdes 1, 2, 3 ,... n, présents au temps t = 0, nous obtenons pour solution du système d'équations ci-dessus les formules A_1 et A_2 du formulaire de l'annexe 2.

Les formules A_1 et A_2 s'appliquent à toutes les filiations radioactives quelle que soit leur évolution. Les formules relatives à un régime d'évolution s'obtiennent en remplaçant les termes littéraux par la ou les valeurs déduites des conditions particulières imposées par cette évolution.

Nous allons appliquer ces formules à l'étude de l'évolution de la filiation du radon soumise à un prélèvement sur filtre ou membrane fixe. Nous réserverons la notation en N et n pour l'évolution dans l'atmosphère ; pour l'évolution sur filtre nous pren-

drons les lettres F et f. Dès maintenant nous écrirons "filiation" pour "filiation du radon", toute autre filiation étant alors précisée. Chaque radionucléïde est défini par son indice (voir tableau 2 de l'annexe I), la filiation étant représentée par le tableau 1.

3 - EVOLUTION DE LA FILIATION SOUMISE A UN PRELEVEMENT SUR FILTRE OU MEMBRANE FIXE

Les descendants solides de filiation se fixent sur les poussières et aérosols en suspension dans l'atmosphère [5 - 67]. Pour déterminer leur activité, il est nécessaire de concentrer ces aérosols au niveau du détecteur; l'un des moyens les plus répandus est le prélèvement sur un filtre ou une membrane fixe. L'aérosol est arrêté par le filtre mais le gaz radon passe à travers la trame. Il y a dissociation de la filiation.

Pendant toute la durée du prélèvement, il y a apport sur le filtre d'atomes de chaque descendant solide, mais il n'y a pas d'apport d'atomes de RaA à partir du radon. Il en résulte une évolution de la filiation sur le filtre totalement différente de son évolution dans l'atmosphère.

A l'arrêt du prélèvement, il n'y a plus d'apport d'atomes radioactifs. Les atomes présents sur le filtre vont disparaître sans renouvellement; c'est la décroissance.

Nous allons étudier ces deux régimes d'évolution dans le cas d'un filtre ou d'une membrane fixe, le mécanisme étant le même pour les deux types de support.

3.1. EVOLUTION DE CHAQUE DESCENDANT PENDANT LE PRELEVEMENT

3.1.1. Formules d'évolution

3.1.1.1. La filiation n'est pas à l'équilibre radioactif dans l'atmosphère

A - Ecriture des formules en fonction des concentrations en atomes Q_i

Au temps t = 0 de début de prélèvement il n'y a aucun atome radioactif sur le filtre d'où

$$F_1(0) = F_2(0) = F_3(0) = F_4(0) = 0$$

Pendant le prélèvement, les quantités f_2, f_3, f_4, apportées sur le filtre, sont directement proportionnelles aux concentrations respectives Q_i, dans l'atmosphère, des descendants 2, 3, 4 et à la quantité d'air D prélevée par unité de temps.

(1)

$f_2 = Q_2 D$	$f_3 = Q_3 D$	$f_4 = Q_4 D$

Q_i a les dimensions d'un nombre d'atomes par unité de volume, f_i restant bien un nombre d'atomes par unité de temps (voir n_i des formules générales). Avec les conditions ci-dessus, les formules A_1 et A_2 deviennent les formules A_3 et A_4 du formulaire de l'annexe 2.

Les formules A_3 sont celles données par J. FONTAN [22]. Les formules A_4 indiquent que, pour chaque descendant, le nombre d'atomes sur le filtre atteint une valeur d'équilibre que nous désignons par "saturation" du filtre.

Les formules A_5 du formulaire donnent le nombre d'atomes au temps t rapporté au nombre d'atomes à saturation du filtre.

B - Ecriture des formules en fonction des facteurs de déséquilibre q_i

Dans le cas d'un déséquilibre de la filiation, on exprime en général la concentration de chaque descendant solide en fonction de la concentration en gaz radon, ce qui nous conduit à poser:

(2)

$\frac{\lambda_2 Q_2}{\lambda_1 Q_1} = q_2$	$\frac{\lambda_3 Q_3}{\lambda_1 Q_1} = q_3$	$\frac{\lambda_4 Q_4}{\lambda_1 Q_1} = q_4$

soit

(3)

$Q_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} Q_1 q_2$	$Q_3 = \frac{\lambda_1}{\lambda_3} Q_1 q_3$	$Q_4 = \frac{\lambda_1}{\lambda_4} Q_1 q_4$

En remplaçant dans les formules (A_3), (A_4), (A_5), les concentrations Q_2, Q_3, Q_4 par leur valeur tirée de (3), nous obtenons les formules (A_6), (A_7) et (A_8) du formulaire de l'annexe 2.

3.1.1.2. La filiation est à l'équilibre radioactif dans l'atmosphère

Les facteurs de déséquilibre q_2, q_3, q_4 sont égaux à l'unité. Les formules (A_6) et (A_7) se simplifient et deviennent (A_9) et (A_{10}) du formulaire de l'annexe 2.

En radioprotection, dans la presque totalité des applications pratiques, il est d'usage de considérer la filiation en régime d'équilibre radioactif établi d'où l'importance des formules (A_9) et (A_{10}).

3.1.2. Courbes d'évolution

Formons le rapport

(4) $$k_i \text{ ou } k_{ieq} = \frac{\text{activité du descendant i au temps t}}{\text{activité du descendant i à saturation sur le filtre}}$$

L'évolution théorique de ce rapport a été calculée à partir des formules (A_6) et (A_7) précédemment établies et programmées

sur les calculateurs du Département de Calcul du C.E.N-SACLAY.

La figure 1.1. donne l'évolution de k_{ieq} lorsque l'équilibre radioactif est réalisé dans l'atmosphère.

La figure 1.2. donne les mêmes courbes pour les déséquilibres suivants :

$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,5 \qquad q_4 = 0,3$

$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,3 \qquad q_4 = 0,1$

Dans tous les cas,le RaA est à saturation après 30 minutes de prélèvement. A un temps t quelconque,l'activité du RaA, déposée sur le filtre, représente toujours la même fraction de son activité à saturation et ceci quel que soit le déséquilibre radioactif de la filiation dans l'atmosphère.

Ce résultat se généralise aux descendants RaB et RaC si l'équilibre radioactif existe dans l'atmosphère. S'il en est autrement, à chaque déséquilibre correspond une courbe d'évolution de l'activité déposée sur le filtre. Les différences sont d'autant plus accentuées que le temps de prélèvement est court ; le déséquilibre relatif entre chaque descendant est plus important. Des réseaux de courbes théoriques,identiques à celles de la figure 1.2, peuvent être obtenus rapidement à partir du programme des formules A_6 et A_7.

En conclusion, nous adopterons un temps de prélèvement identique à la période du RaA lorsque les concentrations à mesurer seront élevées (de l'ordre de 10^{-9} Ci.m^{-3} et plus) ou présenteront des variations rapides. Ce temps pourra atteindre 10 minutes lorsque les concentrations seront faibles et les variations lentes (cas des atmosphères calmes). Ce temps sera conservé pour les variations rapides de faible activité,car la méthode,dans ce cas,est aussi précise qu'un filtre continu qui intègre les variations rapides.

(5) $\boxed{3 \text{ minutes} \leq t \leq 10 \text{ minutes}}$

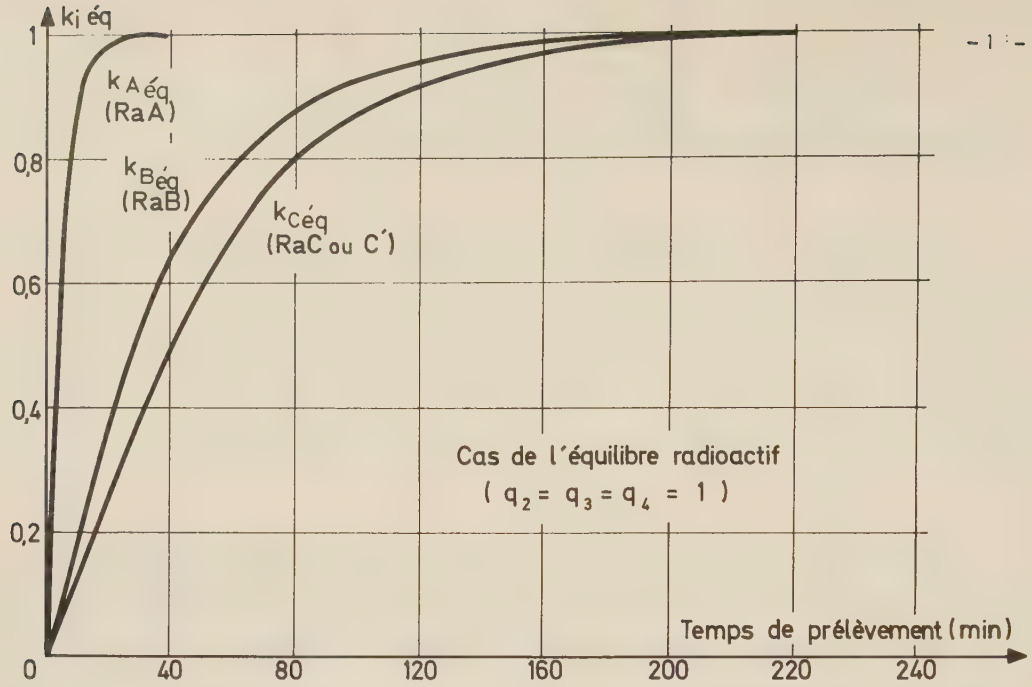


Fig. 1_1 _ Evolution théorique sur un filtre fixe de l'activité déposée pour chaque descendant à vie courte de la filiation du radon

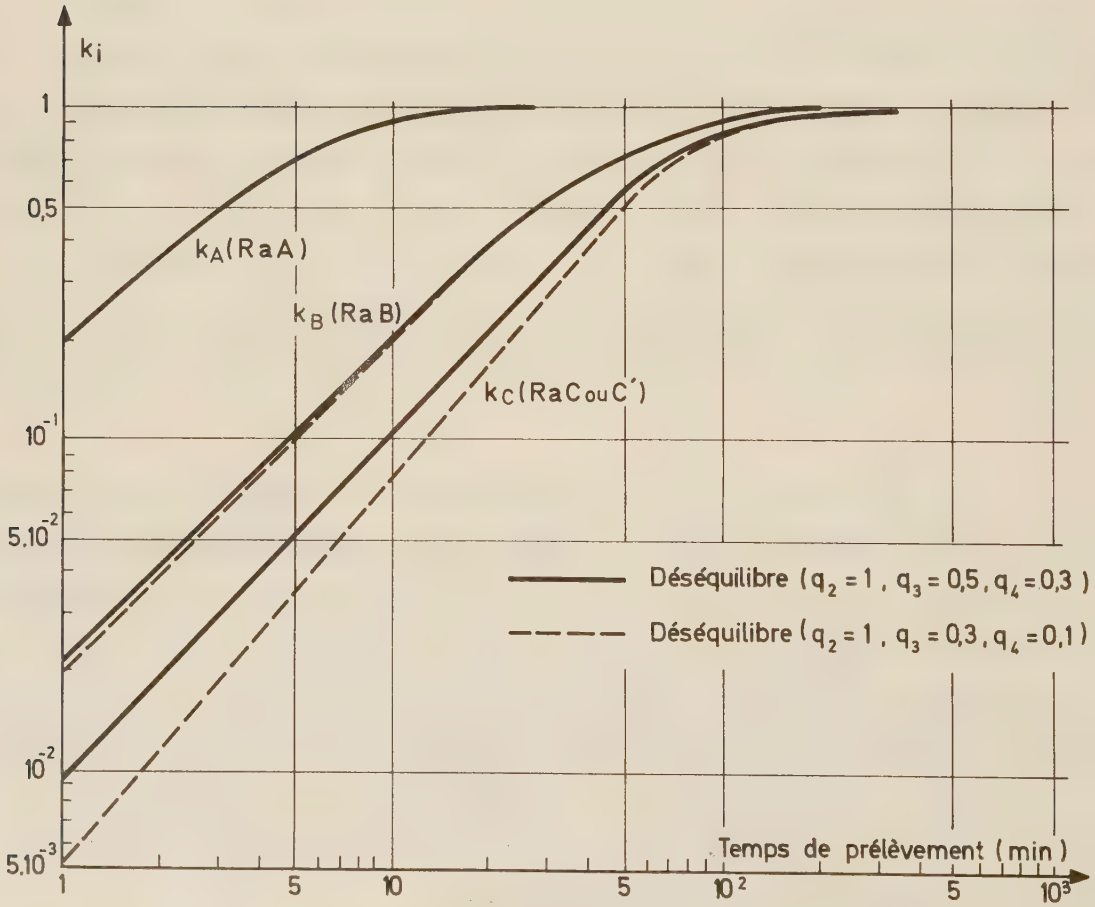


Fig. 1_2 _ Evolution théorique sur un filtre fixe de l'activité déposée pour chaque descendant à vie courte de la filiation du radon

3.2. - DECROISSANCE, APRES LE PRELEVEMENT, DE L'ACTIVITE DE CHAQUE DESCENDANT DEPOSE SUR LE FILTRE FIXE

3.2.1. Formule de décroissance

Soit un temps t de prélèvement suivi d'un temps θ de décroissance. Les atomes radioactifs du descendant i, présents sur le filtre, sont alors F_i (t, θ).

L'arrêt du prélèvement au temps t entraîne :

$\theta = 0$ et $f_2 = f_3 = f_4 = 0$

F_2 (0) = F_2 (t, 0) F_3 (0) = F_3 (t, 0) F_4 (0) = F_4 (t, 0)

Dans ces conditions nous obtenons les formules (A_{11}) du formulaire (annexe 2). Elles donnent la décroissance, en fonction de θ, de l'activité de chaque descendant présent sur le filtre.

Les F_i (t, θ) sont calculés à l'aide des formules (A_8) dans le cas général, des formules (A_{10}) pour l'équilibre radioactif dans l'atmosphère.

3.2.2. Courbes de décroissance

Elles sont représentées par les figures 1.3 et 1.4. Nous avons tracé les courbes théoriques de décroissance correspondant à des temps de prélèvement de courte durée (3 et 10 minutes) et à deux régimes d'évolution de la filiation dans l'atmosphère.

- l'état d'équilibre radioactif ;
- le déséquilibre $q_2 = 1$ $q_3 = 0,5$ $q_4 = 0,3$

sur chaque figure nous trouvons :

- la décroissance de chaque descendant ;
- la décroissance en comptage α (RaA + RaC') ;
- la décroissance en comptage β (RaB + RaC).

La forme des courbes dépend du temps de prélèvement et de

l'état d'équilibre qui s'exprime par rapport à l'activité du radon lorsque $q_2 = 1$. Si $q_2 \neq 1$, le RaA doit être pris comme référence sur le filtre ; le déséquilibre est partiel. Ainsi :

$q_2 = 0,7$ $\quad q_3 = 0,5$ $\quad q_4 = 0,3$ deviennent

$q_2 = 1$ $\quad q_3 = 0,714\ q_2$ $\quad q_4 = 0,458\ q_2$

Nous ne pouvons plus relier l'activité du RaA à l'activité du radon si l'on n'a pas mesuré ce dernier.

Remarquons que seul le RaA possède une décroissance régulière selon sa propre période. Chaque autre descendant présente un "temps de formation" qui précède la décroissance. Cette formation croît en valeur relative lorsque le déséquilibre augmente ou le temps de prélèvement diminue ; elle modifie l'aspect général des courbes de décroissance en comptage α ou β. La période apparente se trouve, de ce fait, en évolution constante pendant les trois premières heures pour tendre vers la période du RaB .

Si la mesure de l'échantillon suit l'arrêt du prélèvement, elle doit être immédiate et de courte durée pour éviter d'importantes corrections et conserver une bonne statistique de comptage lors des très faibles concentrations et déséquilibres.

Un temps de mesure θ identique à la période du RaA a été choisi. Il réalise un bon compromis entre précision statistique et corrections à apporter à la mesure. Dans tous les cas, θ ne peut pas être supérieur au temps de prélèvement t (principe de l'appareil.)

$$3 \text{ minutes} \leqslant \theta \leqslant t \qquad (6) \text{ avec } \frac{t}{\theta} \leqslant 1$$

4 - CALCUL DES ACTIVITES DEPOSEES SUR UN FILTRE OU UNE MEMBRANE FIXE

Exprimée en nombre de désintégrations par seconde, l'activité déposée sur le filtre ou la membrane s'écrit, pour le des-

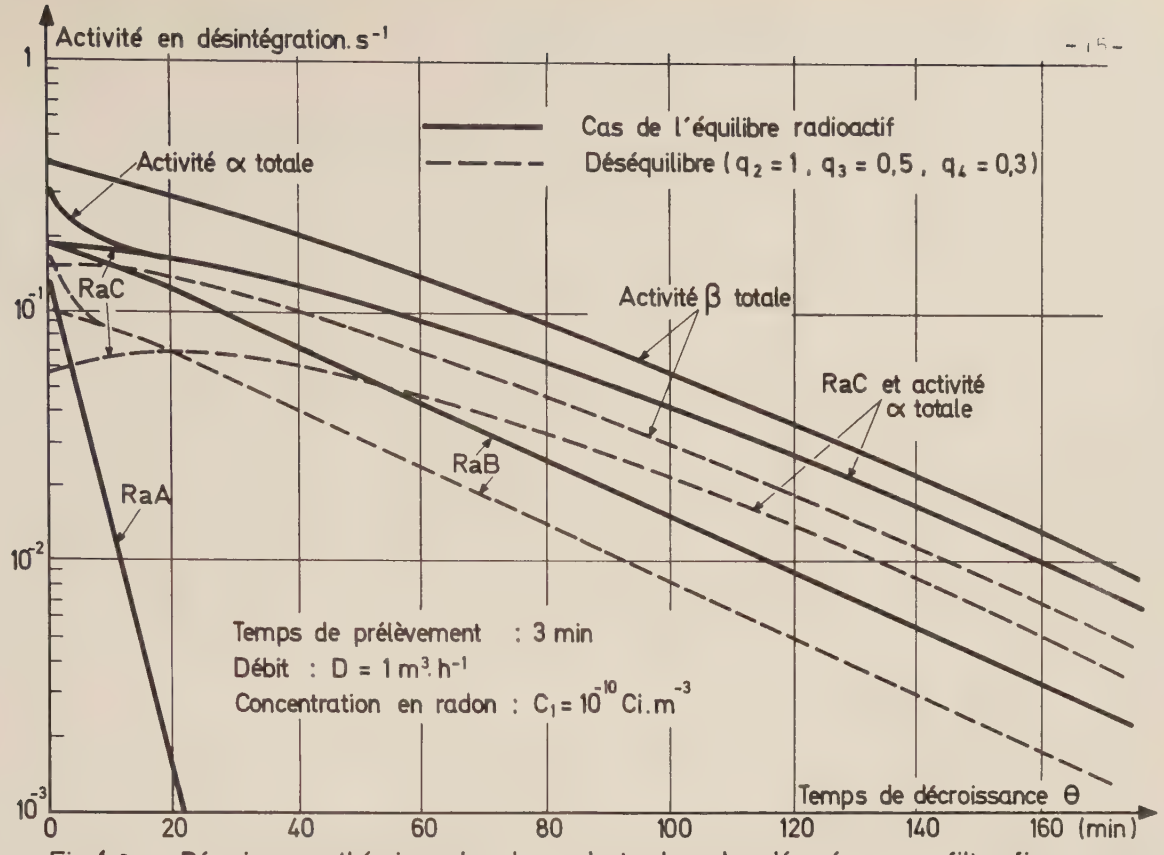


Fig. 1-3 _ Décroissance théorique des descendants du radon déposés sur un filtre fixe

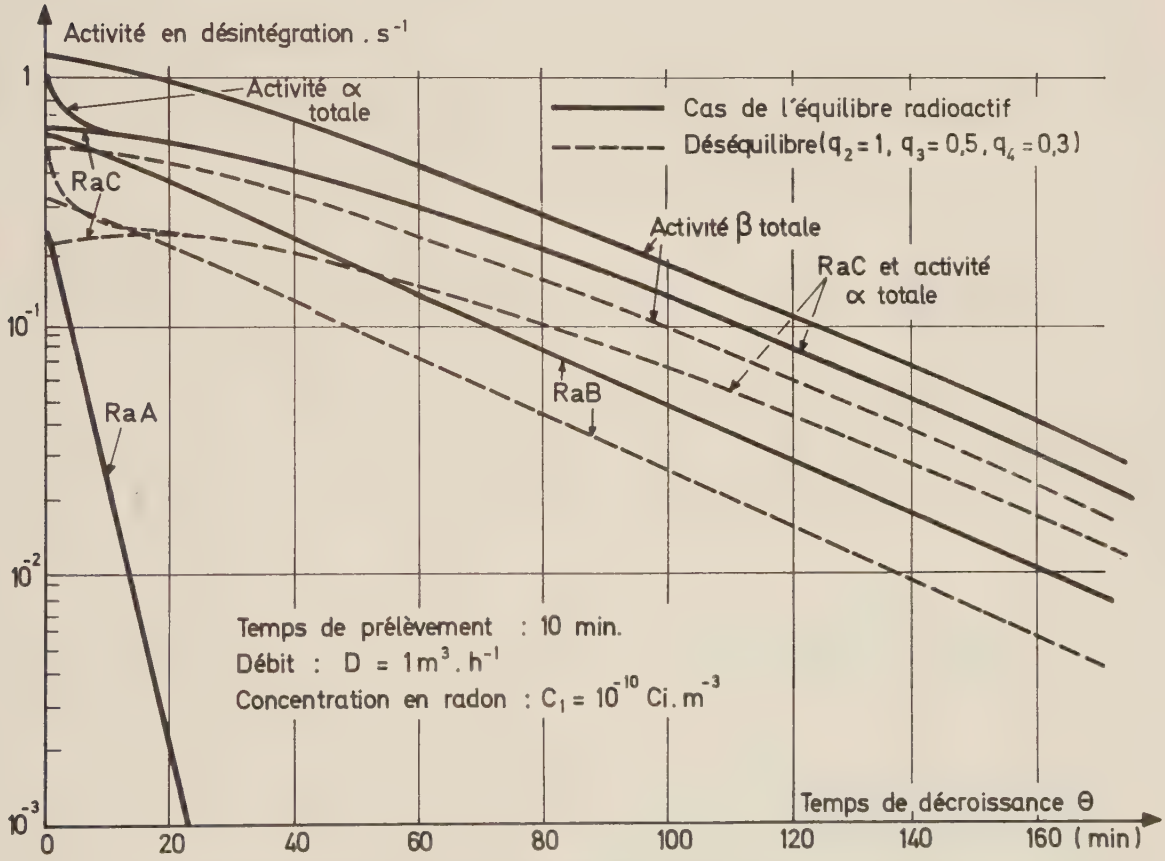


Fig. 1-4 _ Décroissance théorique des descendants à vie courte du radon déposés sur un filtre fixe

cendant i :

$$A_i = \frac{\lambda_i F_i}{60} \qquad (7)$$

pour λ_i en minutes $^{-1}$

La mesure du filtre correspond à un nombre d'impulsions par seconde σ_i. Le passage d'une grandeur à l'autre s'effectue par l'intermédiaire des rendements de détection R_d, de filtration R_f et des diverses corrections K dues à la méthode de mesure.

$$\sigma_{i \ imp.s^{-1}} = \frac{\lambda_i F_i}{60} R_d R_f K \qquad (8)$$

Les quantités de gaz ou de descendants dans l'atmosphère s'expriment à partir de leur concentration C_i en Curie par mètre cube d'air.

$$3{,}7\ 10^{10} C_i = \frac{\lambda_i Q_i}{60} \qquad (9)$$

L'activité α du filtre ou de la membrane est la somme de celle du RaA et du RaC' .

$$A_\alpha = \frac{\lambda_2 F_2 + \lambda_4 F_4}{60} \qquad (10)$$

$$A_\beta = \frac{\lambda_3 F_3 + \lambda_4 F_4}{60} \qquad (11)$$

4.1. ACTIVITE DE LA MEMBRANE A L'ARRET DU PRELEVEMENT

4.1.1. Cas général

4.1.1.1. Activité en fonction des concentrations en atomes Q_i

Si chaque descendant est apporté sur le filtre avec le débit D mètre cube par heure pendant t minutes, il donne lieu à un taux de comptage $\mathcal{G}_i$ en impulsion par seconde tel que :

$$\mathcal{G}_i = \frac{\lambda_i F_i}{3600 \times 60} R_d R_f K \qquad (12)$$

En remplaçant F_i par sa valeur (formule A_3) et en effectuant les calculs numériques, nous obtenons les formules A_{12}, A_{13} et A_{14} du formulaire de l'annexe 2. Les formules A_{13} sont celles déjà établies par J. FONTAN [22]

4.1.1.2. Activité en fonction des facteurs de déséquilibre q_i

F_i se déduit des formules A_6 dans lesquelles on remplace $\lambda_i Q_i$ par sa valeur déduite de la relation (8). Nous obtenons les formules A_{15}, A_{16} et A_{17} du formulaire. $k_{A\,eq}$ est donné figure 1.1.

Si $q_2 = 1$ ces formules se simplifient.

4.1.2. Cas de l'équilibre radioactif de la filiation dans l'atmosphère.

Gaz radon et descendants solides sont à la même concentration C_1 dans l'atmosphère. La mesure du filtre s'obtient rapidement à partir des facteurs k_i donnés par les courbes de la figure 1.1.

Les relations A_{18}, A_{19} et A_{20} du formulaire s'obtiennent à partir des formules A_{10}.

4.2. ACTIVITE SUR LA MEMBRANE APRES L'ARRET DU PRELEVEMENT

L'activité sur la membrane à un instant θ quelconque

de décroissance se déduit des formules A_{11}. Nous obtenons les relations A_{21}, A_{22}, A_{23} du formulaire.

4.3. RELATIONS ENTRE CONCENTRATIONS ET FACTEURS DE DESEQUILIBRE

Concentrations en atomes Q_i et concentrations en $Ci.m^{-3}$ C_i sont liées par la relation (9).

$$3,7.10^{10} C_i = \frac{\lambda_i Q_i}{60} \quad \text{soit } Q_i = \frac{3,7.10^{10} \times 60}{\lambda_i} C_i \qquad (13)$$

Si dans les formules A_{12} nous remplaçons les Q_i par leur valeur déduite de (13) nous obtenons les formules A_{15} du formulaire ou C_i remplace les C_1 q_i.

Les facteurs de déséquilibre q_i sont alors liés aux concentrations C_i par la relation

$$\boxed{q_i = \frac{C_i}{C_1}} \qquad (14)$$

Les q_i sont également liés aux Q_i par les relations (2) et (3) de la page 10.

CHAPITRE 2

ETUDE DES MEMBRANES CAPILLAIRES

Le prélèvement d'un échantillon sur membrane et sa mesure sont deux opérations distinctes. L'opération de prélèvement revient à fabriquer une source ; la mesure de cette source, pour être exacte, nécessite de connaître la répartition de l'activité déposée et par suite, la pénétration de l'aérosol dans la membrane. Ceci est encore plus réel si la mesure de la membrane se fait par spectrométrie α.

Pour obtenir la distribution en énergie des particules α qui entrent effectivement dans le volume sensible du détecteur, nous utilisons une méthode de Monte Carlo. Divers sous-programmes permettent d'introduire, ou de supprimer à volonté, les effets des écrans de différentes natures et épaisseurs (couche d'air, couche morte du détecteur à semi-conducteur ....). Plusieurs lois de répartition de l'activité spécifique α au sein des sources à mesurer peuvent être utilisées. Cette technique de calcul possède une souplesse de mise en oeuvre que ne permet pas le calcul intégral.

L'accord entre les spectres théoriques et les spectres expérimentaux sera considéré comme une vérification à postériori de la technique de calcul lorsque le spectre théorique sera calculé à partir de données issues du spectre expérimental.

1 - LES DIFFICULTES DE LA MESURE SPECTRALE D'UN RADIONUCLEIDE α

La perte d'énergie d'une particule α dans la matière est très grande (de l'ordre du MeV par micron de parcours dans la matière, du MeV par cm de parcours dans l'air). Il en résulte une absorption rapide qui se traduit par un élargissement important de la raie α (figure 2.1.)

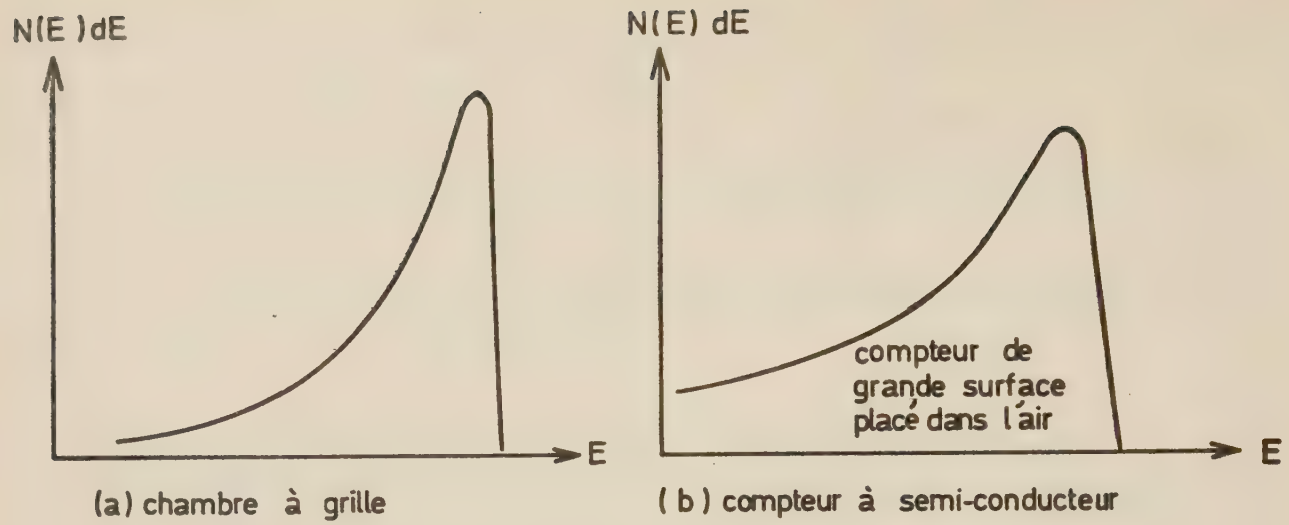


Figure 2.1. : exemples de spectres expérimentaux d'une raie α.

La forme du spectre dépend d'un grand nombre de facteurs qui sont :

1. - la nature de la source

a) le pouvoir d'arrêt massique du matériau pour les particules α.

b) les fluctuations statistiques de la perte d'énergie ou "straggling".

c) les caractéristiques de la source ;

. source mince, épaisse, large, ponctuelle.
. loi de répartition de l'activité spécifique dans la source (activité spécifique constante en fonction de l'épaisseur - répartition exponentielle ....).

2 - Les conditions de mesure

a) les matériaux ou écrans traversés par la particule α avant de pénétrer dans le volume sensible du détecteur .

b) le détecteur utilisé ;

. géométrie de détection ;
. résolution électronique ;

2 - HYPOTHESES DE TRAVAIL

Avant d'étudier les facteurs énumérés ci-dessus, et pour simplifier les calculs, nous posons les hypothèses suivantes :

1 - Les sources sont assimilées à des cylindres dont la hauteur est très petite devant le diamètre.

2 - La surface de base du cylindre est inférieure ou égale à la surface d'entrée du détecteur.

3 - Les particules α se propagent en ligne droite et ne sont pas déviées lorsqu'elles changent de milieu. Les changements de direction lors des collisions avec les électrons sont insignifiants étant donné les transferts d'énergie très faibles (ce qui semble statistiquement justifié).

4 - Les particules α sont émises avec la même probabilité dans tout l'espace.

3 - CONDITIONS DE MESURE

Les mesures seront effectuées avec un détecteur à semi-conducteur du type barrière de surface travaillant à l'air libre (quelques fois sous vide). La surface utile est de 9,5 cm^2, la surface de l'échantillon de 8 cm^2.

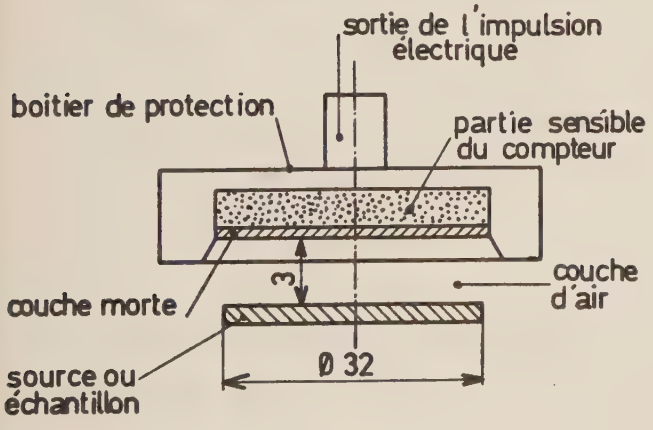


Fig.2_2. Géométrie de détection utilisée pour toutes nos mesures.

Une particule α partant de la source, (membrane ou filtre) avant de pénétrer dans le volume sensible du compteur, traverse successivement :

. une fraction de l'épaisseur de la membrane ou du filtre ;

. une épaisseur d'air de 3 mm (0,37 $mg.cm^{-2}$) ou le vide ;

. la couche morte du compteur à

semi-conducteur (masse surfacique 0,04 mg.cm^{-2}).

La géométrie de mesure est celle définie par la figure 2.2. L'angle d'incidence des particules α a une grande influence sur la forme des spectres α.

4. - POUVOIR D'ARRET MASSIQUE DES PARTICULES α, FLUCTUATIONS STATISTIQUES DE LA PERTE D'ENERGIE ET RESOLUTION ELECTRONIQUE

L'étude de ces grandeurs est primordiale pour obtenir une solution aussi exacte que possible de nos problèmes, mais elle déborde du cadre de notre sujet. Nous avons reporté l'essentiel de ce travail en annexes 3 et 4.

Précisons simplement que nous utilisons une relation linéaire du type $K_1E + K_2$ pour exprimer l'inverse du pouvoir d'arrêt massique des α de 1 à 10 MeV. Le straggling ou fluctuations statistiques de la perte d'énergie est calculé à partir des théories de BOHR et de WILLIAMS-BETHE. La résolution électronique du détecteur, dans les conditions de fonctionnement définies en annexe 4, se traduit par une largeur de 90 keV.

5 - ETUDE DES MEMBRANES CAPILLAIRES

La source à étudier est une membrane (ou un filtre) sur lesquels sont déposés les aérosols par passage de l'air à filtrer à travers l'épaisseur de la membrane (ou du filtre:nous comparerons certaines caractéristiques des membranes à celles du papier filtre rose).

Les membranes capillaires offrent des caractéristiques intéressantes pour la spectrométrie α de leurs dépôts. Nous allons les étudier.

5.1. Rappels de la théorie de la filtration par les membranes capillaires

5.1.1. Définition et composition [37] [38]

Les membranes capillaires sont une juxtaposition de pores répartis régulièrement sur toute la surface (figure 2.3.). Leur distribution est gaussienne ; le nombre moyen de pores

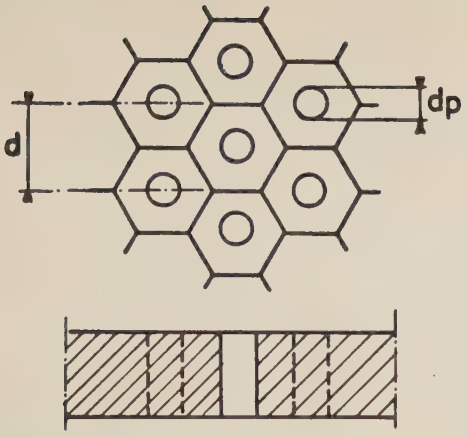


Fig.2.3. Membrane du type capillaire [40]

par cm^2 est de l'ordre de 10^8. Le diamètre du pore est connu avec précision.

Exemple membrane MF 30 : 0,3 $\pm$ 0,02 µm

Les membranes que nous utiliserons sont en acétate de cellulose ou en ester de cellulose.

La porosité de la membrane peut se définir de deux façons [39]:

Si S_p est la surface d'un pore et N_p le nombre de pores par unité de surface, la porosité P, définie comme le rapport du volume des pores V_p au volume V_m de la membrane, s'écrit :

$$P = \frac{V_p}{V_m} = S_p \quad N_p$$

Si la porosité P est exprimée comme une fonction du diamètre du pore d_p et de la distance d entre les axes de 2 pores consécutifs, il vient :

$$P = \frac{1}{2} \quad \sqrt{3\pi} \left(\frac{d_p}{d}\right)^2 \quad < 1$$

5.1.2. Théorie de la filtration par les membranes capillaires

Comme pour les filtres à fibres, la rétention de l'aérosol par les membranes capillaires s'effectue par inertie ou impact, sédimentation et diffusion [39] [40].

5.1.2.1. Filtration par impact

L'efficacité d'impaction par inertie $\mathcal{E}_i$ s'obtient par la relation de SPURNY [40]

$$\mathcal{E}_i = \frac{2\,\mathcal{E}_i}{1+\alpha} - \frac{\mathcal{E}'^{\,2}_i}{(1+\alpha)^2}$$

où $\varepsilon_i' = 2\,I\sqrt{\alpha} + 2\,I^2 \exp\left(-\frac{1}{I\sqrt{\alpha}}\right) - 2\,I^2 + \alpha$

avec $I = \frac{m\bar{U}}{6\,\pi\,\eta\,r\,R}$, $\bar{U} = \frac{q}{P}$, $\alpha = \frac{d_p}{d}$ (voir figure 2.3.).

$\bar{U}$ est la vitesse moyenne de passage du fluide dans la membrane, q la vitesse frontale. m est la masse de la particule de rayon r. η est le coefficient de viscosité dynamique du fluide, I le paramètre d'impact par inertie. α est défini pour une porosité P donnée.

Pour un aérosol de rayon de particules r et une membrane de porosité P, l'efficacité d'impaction ε_i augmente avec la vitesse de passage $\bar{U}$, donc avec le débit de prélèvement ; la pénétration diminue.

5.1.2.2. Filtration par diffusion

La théorie de la pénétration des particules par diffusion dans un capillaire a été établie par TOWNSEND [39], GORMLEY [41] GORMLEY et KENNEDY [42] et améliorée par TWOMEY [43].

La pénétration P_D par diffusion dans le capillaire, exprimée comme le rapport du nombre de particules n_o de l'aérosol avant la traversée de la membrane au nombre de particules n après la traversée, s'écrit d'après TWOMEY :

$$P_D = \frac{n}{n_o} = 0{,}81904 \exp(-3{,}6568\,N_D) + 0{,}0972 \exp(-22{,}3045\,N_D) + 0{,}03248 \exp(-56{,}95\,N_D) + 0{,}0157 \exp(-107{,}6\,N_D) \ldots$$

avec $N_D = \frac{L\,D_i}{R^2\,\bar{U}}$

R est le rayon du capillaire (ou pore) et L sa longueur.

D_i est le coefficient de diffusion de la particule.

N_D est le coefficient de précipitation par diffusion.

L'efficacité ε_D de précipitation par diffusion s'écrit :

$$\varepsilon_D = 1 - P_D$$

Si R ou $\bar{U}$ augmente, N_D diminue et P_D augmente, ε_D décroit.

Sous l'effet de la diffusion, l'efficacité ε_D diminue plus vite lorsqu'on augmente le diamètre du capillaire que lorsqu'on accroît la vitesse de passage.

En conclusion, la meilleure condition d'utilisation d'une membrane, pour éviter au maximum la pénétration de l'aérosol et conserver une bonne efficacité, est d'utiliser le débit maximal possible sans trop augmenter le rayon du capillaire. Nous utiliserons des membranes ayant un diamètre du pore d_p de 0,3 et 1,2 µm.

5.2. Caractéristiques des membranes capillaires

Comme pour les filtres à fibres, les performances d'une membrane se définissent d'après les caractéristiques générales qui sont :

- la perte de charge en fonction de la vitesse moyenne de passage du fluide ;
- le rendement de collection ;
- le colmatage ;
- la loi de répartition de l'aérosol dans l'épaisseur de la membrane et la pénétration associée.

5.3. Mesures expérimentales des caractéristiques des membranes capillaires

Toutes les caractéristiques que nous allons déterminer seront comparées à celles d'un filtre rose Schneider Poelman connu pour son efficacité quasi absolue.

5.3.1. Caractéristiques dimensionnelles

Elles sont résumées dans le tableau 2.1. ci-après.

La masse surfacique est déduite de la pesée de 20 à 50 échantillons de 25 ou 50 cm^2 de surface.

Désignation des grandeurs et unités	Membrane MF 30	Membrane RAWP	Membrane MF 150	Membrane SSWP	Filtre rose SP
porosité en %	80	82	80	83	
diamètre du pore en µm	0,3 ± 0,02	1,2 ± 0,3	1,2 ± 0,3	3 ± 0,9	
masse surfacique en $mg.cm^{-2}$	5,4 ± 0,2	4,2 ± 0,16	4,7 ± 0,1	3 ± 0,14	16,5 ± 0,5
masse volumique en $g.cm^{-3}$	0,415 ± 0,05	0,28 ±0,03	0,336 ± 0,030	0,20 ± 0,030	0,37 ± 0,07
épaisseur en mm	0,130± 0,010	0,150± 0,010	0,140± 0,010	0,150± 0,010	0,450± 0,050

Tableau 2.1. Caractéristiques dimensionnelles de nos membranes et du filtre rose.

5.3.2. Perte de charge (figure 2.4.)

La perte de charge est donnée en fonction de la vitesse moyenne de passage de l'air $\bar{U}$. Le débit D est mesuré avec un volucompteur étalon du type Gallus (précision ± 3 %). Le manomètre à mercure, placé entre le filtre et la pompe, mesure la dépression due au filtre et au volucompteur (dépression due au volucompteur 1 mb).

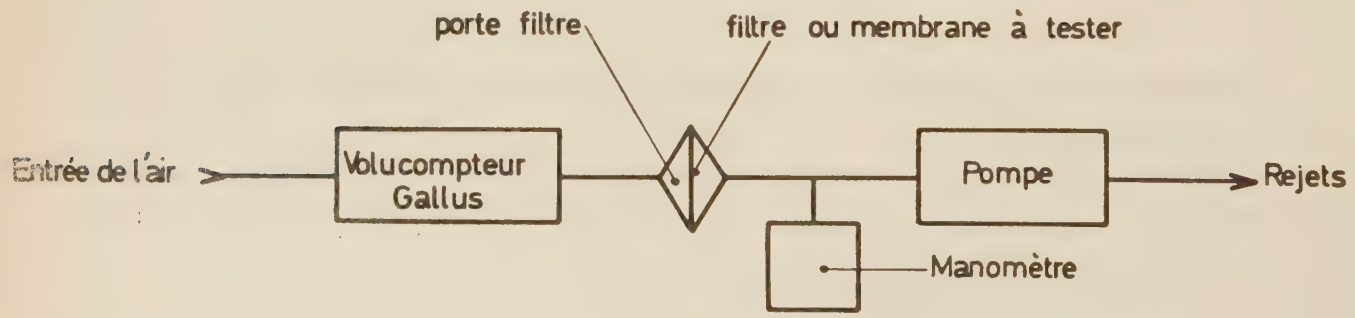


Figure 2.4. Principe de mesure de la perte de charge d'une membrane ou d'un filtre.

La vitesse moyenne de passage $\bar{U}$ est obtenue pour les membranes par la relation :

$$\bar{U}_{cm.s^{-1}} = \frac{D_{cm^3.s^{-1}}}{S_{cm^2} \times P\ \%}$$

Les résultats sont donnés par la figure 2.5.

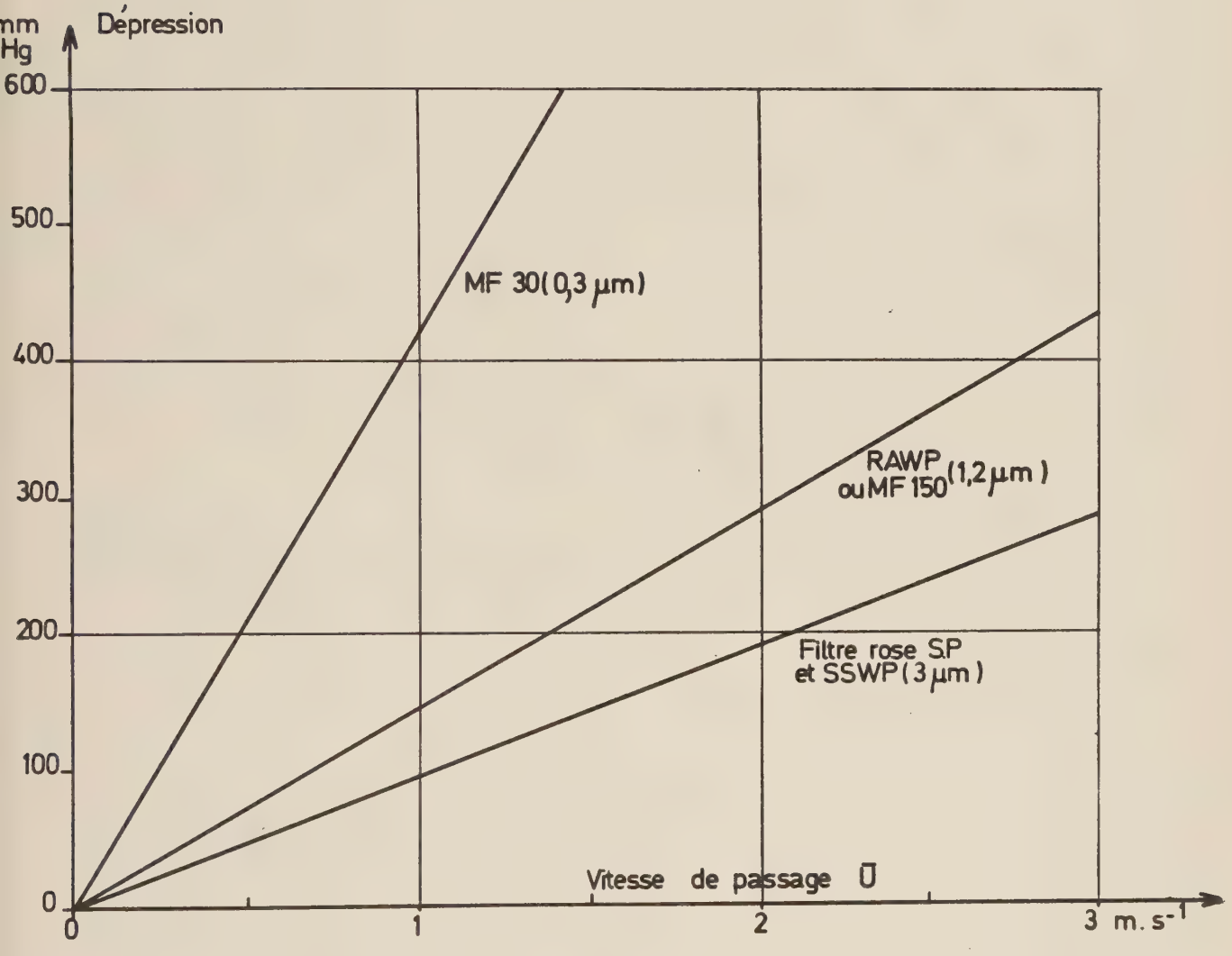


Figure 2.5. Perte de charge dans les membranes capillaires en fonction de la vitesse moyenne de passage de l'air.

5.3.3. Rendement de collection ou de filtration R_f

Le rendement de collection des membranes a été déterminé

par comparaison avec un filtre rose connu pour son rendement quasi absolu [44] [45]. Cette méthode est souvent employée [22] [45]. Deux aérosols sont utilisés.

5.3.3.1. Aérosol ultra fin

Il est obtenu à partir d'un générateur de radon enfermé dans une enceinte de faible volume (10 l). L'air filtré passe dans l'enceinte et entraîne les ions RaA provenant de la désintégration du radon (figure 2.6.). Ce procédé est analogue à celui de J. FONTAN [22] pour la mesure des petits ions RaA de la chambre à désintégration. Nous n'avons pas effectué de mesures de mobilité pour définir la nature exacte de cet aérosol, mais les spectres α des descendants du radon piégés sur la membrane confirment la présence d'un aérosol ultra fin. Le RaC' n'a pratiquement pas le temps de se former. Nous n'analysons que le RaA .

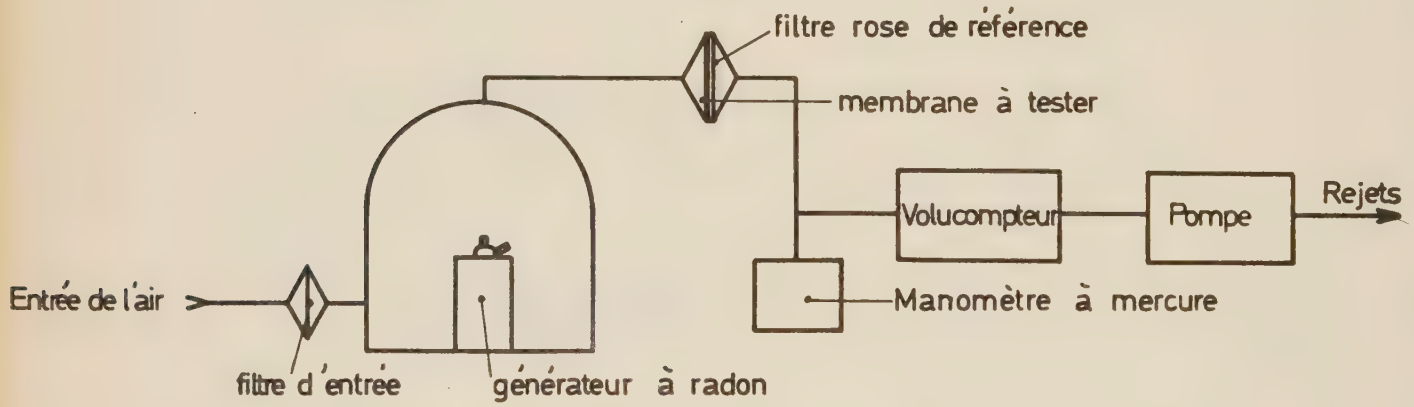


Figure 2.6. Schéma de principe de la mesure du rendement de collection d'une membrane (aérosol ultra fin).

Si R_f est le rendement à déterminer, B_F et B_m les taux de comptage respectifs du filtre et de la membrane, on a :

$$R_f = \frac{1}{1 + \frac{B_f}{B_m}}$$

Résultats : tableau 2.2.

Les activités mesurées sur la membrane sont de 10^4 à 10^5 impulsions en 3 minutes.

Vitesse de passage en $m.s^{-1}$		0,13	0,26	0,63	1,80	2,60	3
R_f	membrane MF 30	0,9999	0,9997	0,9992	0,997 (0,999)	/	/
	membrane RAWP	0,9997	0,9994	0,999	0,996	0,98 (0,99)	0,82 (0,95)
	membrane SSWP	0,993	0,99	0,97	0,91	0,80 (0,87)	0,63 (0,75)
	filtre rose	référence					

Tableau 2.2. Rendement de collection des membranes capillaires pour l'aérosol ultra fin.

Conclusion : Les membranes capillaires MF 30 et RAWP ont des rendements quasi absolus pour l'aérosol ultra fin jusqu'à des vitesses moyennes $\bar{U}$ de l'ordre de 2,5 $m.s^{-1}$.

5.3.3.2. Aérosol atmosphérique

Le filtre d'entrée du montage précédent est supprimé. L'enceinte est à grand volume (4 m^3). L'aérosol est donc l'air atmosphérique du CEN-SACLAY enrichi en descendant du radon (RaC'). Le temps de prélèvement est de 10 minutes.

Les rendements obtenus (chiffres entre parenthèses du tableau 2.2.) sont quasi absolus jusqu'à des vitesses moyennes de 2,5 $m.s^{-1}$ pour les membranes MF 30 et RAWP. La membrane SSWP présente des rendements très mauvais ce qui confirme les résultats théoriques du paragraphe 5.1.2. Le rendement, ou efficacité,

décroit très vite avec l'accroissement du diamètre du pore. Pour conserver un bon rendement il faut également limiter la vitesse moyenne $\bar{U}$, donc le débit de prélèvement D. 1,2 µm est le diamètre du pore à ne pas dépasser. Avec la surface de prélèvement utilisée (8 cm^2), si nous limitons $\bar{U}$ à 2,5 $m.s^{-1}$ (membrane RAWP) et 0,8 $m.s^{-1}$ (membrane MF 30), le rendement de collection de chaque membrane restera quasi absolu pour tous les aérosols. Nous définissons des débits limites de prélèvement qui sont :

membrane RAWP	$D \leqslant 6\ m^3.h^{-1}$ (100 l. mn^{-1})
membrane MF 30	$D \leqslant 1{,}8\ m^3.h^{-1}$ (30 l.mn^{-1})

5.3.4. Le colmatage

Nous n'avons pas étudié le colmatage, celui-ci étant toujours négligeable pour les temps de prélèvement fixés (10 minutes au maximum).

5.3.5. La loi de répartition de l'activité dans les membranes capillaires

Il est admis que la loi de répartition des aérosols dans les membranes et les filtres est exponentielle. [45] [46], fait vérifié expérimentalement par BILLARD [47] et PARNIANPOUR [48].

Si nous appelons A_0 l'activité spécifique superficielle et dA l'activité spécifique d'une couche d'épaisseur dx située à la distance x de la surface de la membrane ou du filtre, nous avons :

$$dA = - \mu A_0 dx$$

µ est un coefficient de proportionnalité que nous appelons "coefficent d'efficacité" de la membrane ou du filtre. Il est exprimé en $cm^2.mg^{-1}$ si x est en $mg.cm^{-2}$.

$$A = A_0 \, e^{-\mu x}$$

Les spectres α des prélèvements sur membranes ou sur filtre, tracés en papier semi-logarithmique, présentent un dégradé énergétique quasi-linéaire (figure 2.7.).

Au canal numéro i correspond une énergie α résiduelle comprise entre E_i et $E_i + \Delta E$ où ΔE est la largeur du canal exprimée en keV. Toutes les particules α qui ont la même énergie résiduelle sont comptées dans le même canal.

6 -ETUDE DE LA PENETRATION DES AEROSOLS DANS LES MEMBRANES CAPILLAIRES

En première approximation nous allons négliger les influences de la couche morte du détecteur, de la couche d'air et des paramètres de prélèvement devant l'incidence de la loi de répartition de l'activité dans la membrane. Le dégradé énergétique des spectres de la figure 2.7. représente assez bien la loi exponentielle de répartition ; la pente du dégradé est liée directement au coefficient d'efficacité μ.

6.1. Détermination expérimentale du coefficient d'efficacité μ

Soit en coordonnées semi-logarithmiques deux valeurs N_1 et N_2 du nombre d'impulsions par canal, il vient :

$\text{Log} \frac{N_2}{N_1} = \mu (x_1 - x_2)$ où x_1 et x_2 sont les numéros des canaux correspondants. Si N_1 et N_2 sont choisis de telle sorte que $\frac{N_2}{N_1} = 10$ il vient

$$\mu = \frac{2,3}{x_1 - x_2} = \frac{2,3}{x}$$

Chaque canal représente l'énergie résiduelle à ΔE près et $(x_1 - x_2)$ la différence des parcours correspondants. Si k désigne l'étalonnage en keV par canal du spectromètre, à x canaux correspond l'énergie absorbée y telle que

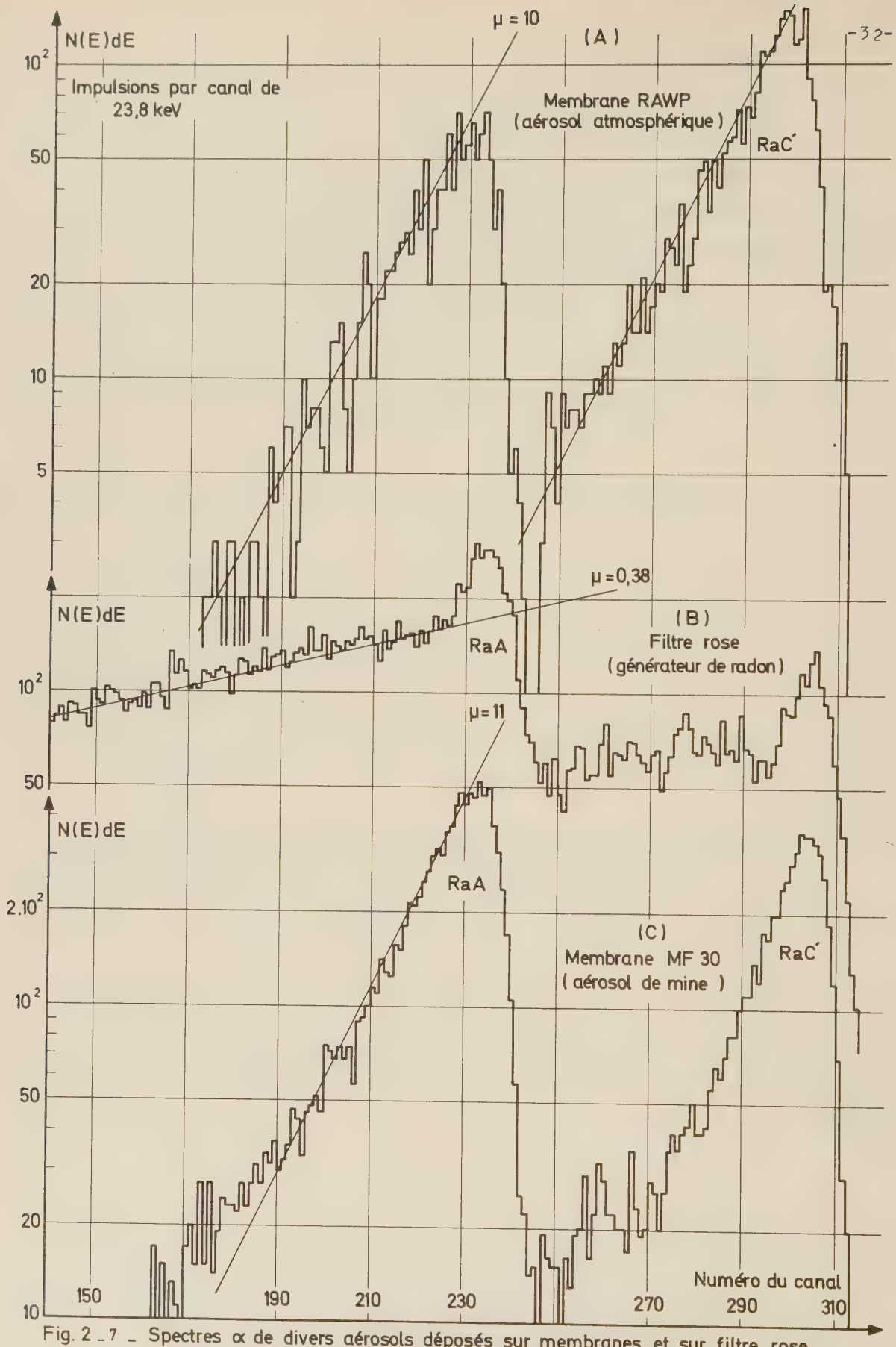


Fig. 2 _ 7 _ Spectres α de divers aérosols déposés sur membranes et sur filtre rose _ Etude du dégradé énergétique et de la pénétration

Nota - Le nombre de particules théoriques injectées dans la source donne des hauteurs de pic sensiblement identiques et sans relation avec les hauteurs des pics expérimentaux ainsi que leur rapport

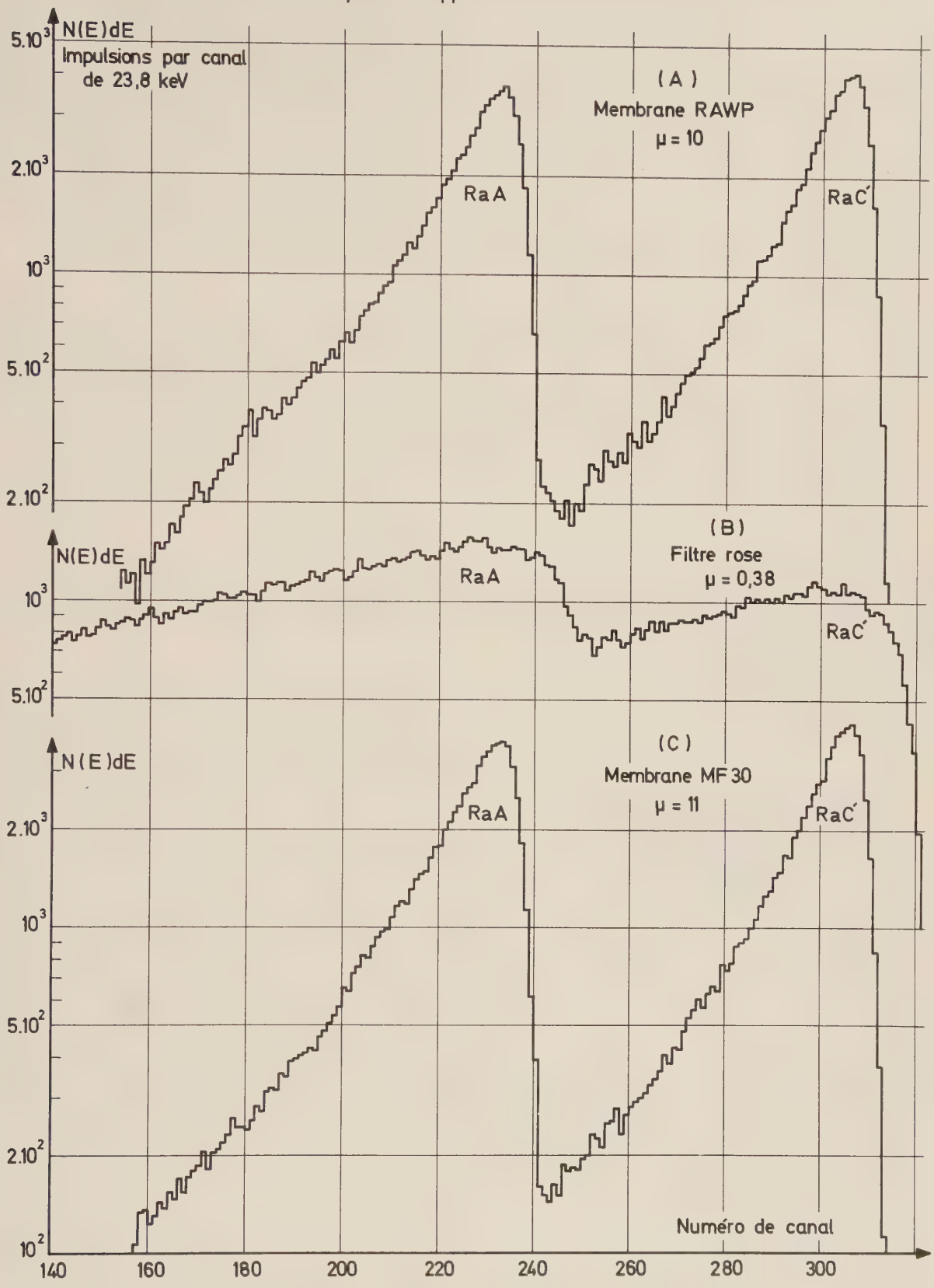


Fig. 2_8 _ Méthode de Monte Carlo - Spectres théoriques obtenus à partir des valeurs expérimentales du coefficient d'efficacité μ (fig. 2_7)

$$y_{keV} = kx$$

Connaissant la relation énergie-parcours α pour la membrane étudiée, nous pouvons déduire l'épaisseur de membrane traversée.

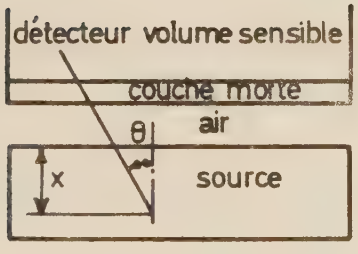
Exemple : sur le spectre (a) de la figure 2.7. nous avons tracé la droite figurant la pente du dégradé énergétique. Pour $N_2 / N_1 = 10$ nous avons: nombre de canaux $x = 34$, d'où $y = 23,8 \times 34 = 810$ keV.

Pour une perte d'énergie de 0,8 MeV la relation énergie-parcours (formule 3, annexe 3) donne un parcours α de 0,23 $mg.cm^{-2}$ donc une pénétration équivalente.

$$\mu = \frac{2,3}{0,23} = 10$$

6.2. Recherche du spectre théorique - Méthode de Monte Carlo

6.2.1. Principe



Nous nous donnons un nombre N de particules contenues dans la membrane. Soit une particule α émise depuis la profondeur x dans la direction θ. Nous calculons son parcours dans la membrane, dans l'air et dans la couche morte. Nous répétons ceci pour les N particules tirées au hasard en direction et profondeur, la loi de répartition des x étant composée par la loi de répartition exponentielle dans laquelle intervient le coefficient d'efficacité μ. Nous tenons compte également du straggling et de la résolution électronique pour chaque énergie α.

6.2.2. Programme

Le programme est établi pour 4 types de répartition : sources épaisses et homogènes, distribution exponentielle, distribution à 2 exponentielles et distribution connue point par point.

Les "données" extérieures au programme sont les suivantes :

- le nombre d'énergies maximales α portées dans le spectre et la valeur de chaque énergie ;
- la masse surfacique en $mg.cm^{-2}$ de la membrane ou du filtre, de la couche d'air et de la couche morte, ainsi que les masses atomiques de ces matériaux ;
- la résolution en keV par canal du sélecteur, la résolution électronique et le straggling des α dans la membrane étudiée ;
- le nombre de points utilisés pour introduire la fonction de répartition de l'activité dans la source et le nombre des particules introduites dans la source (méthode de Monte Carlo) ;
- les facteurs k_1 et k_2 relatifs à l'air et nécessaires pour le calcul des parcours α (voir annexe 3) ;
- le ou les coefficients d'efficacité μ.

Tous ces paramètres peuvent donc varier à volonté ce qui rend la méthode applicable à tous les types de sources ou de détecteurs dans les limites posées au paragraphe 2.

6.2.3. Résultats

La figure 2.8. montre les spectres théoriques obtenus. Ils se superposent aux spectres expérimentaux correspondants et constituent une vérification théorique de la méthode de recherche du coefficient d'efficacité μ. Ils confirment également la technique de calcul .

La superposition n'est pas encore parfaite. De nombreux points de détails restent à améliorer principalement :

- la détermination du coefficient d'efficacité μ et de la résolution électronique ;
- la méthode de calcul du straggling ;
- la mesure précise de la couche morte et de la couche d'air ;
- l'influence des paramètres de prélèvement.

Nota : Il faut souligner que des correspondances parfaites de spectres théoriques et expérimentaux ont été obtenues avec une source épaisse d'uranium, mesurée avec notre compteur, et une chambre à grille.

En marge des spectres d'autres résultats sont obtenus. Ce sont les rendements théoriques de détection α, $R_{dt\alpha}$ et le facteur de correction C_α due à l'autoabsorption dans la membrane.

6.3. Rendement théorique de détection α

Le rendement théorique de détection α, $R_{dt\alpha}$, correction d'autoabsorption comprise, est le rapport :

$$R_{dt\alpha} = \frac{\text{nombre de particules sortant de la couche morte}}{\text{nombre total de particules émises dans la membrane}}$$

Le tableau 2.3. donne la valeur de $R_{dt\alpha}$ pour les membranes MF 30, RAWP et MF 150 en fonction du coefficient d'efficacité μ.

Coefficient d'efficacité μ $cm^2.mg^{-1}$	Rendement théorique de détection α, $R_{dt\alpha}$, en %					
	membrane MF30		membrane RAWP		membrane MF 150	
	6 MeV	7,68 MeV	6 MeV	7,68 MeV	6 MeV	7,68 MeV
6	44,879	46,517	44,914	46,543	44,880	46,526
7	45,183	46,712	45,076	46,672	45,188	46,703
8	45,391	46,749	45,322	48,00	45,384	46,742
9	45,468	46,953	45,473	46,951	45,467	46,950
10	45,530	46,974	45,626	47,010	45,533	46,971

Tableau 2.3. Rendement de détection théorique α, $R_{dt\alpha}$ avec diverses membranes capillaires (méthode de Monte Carlo).

Le tableau 2.4. donne la valeur de $R_{dt\alpha}$ en fonction de μ pour un filtre rose.

Coefficient d'efficacité μ $cm^2.mg^{-1}$		0,20	0,25	0,30	0,35	0,40	0,45	0,50	0,55	0,60	0,65	0,70	0,75
$R_{dt\alpha}$ en %	énergie α 6 MeV	16,65	18,98	21,28	23,21	25,06	26,79	28,12	29,5	30,66	31,59	32,45	33,22
	énergie α 7,68 MeV	22,45	25,20	27,43	29,49	31,27	32,77	34,0	35,28	36,09	36,94	37,64	38,30

Tableau 2.4. Rendement théorique de détection α $R_{dt\alpha}$ d'un filtre rose (méthode de Monte Carlo)

D'après ces deux tableaux nous pouvons formuler les remarques suivantes :

1- une membrane, à énergie α constante, offre un rendement théorique de détection pratiquement constant lorsque le coefficient d'efficacité μ passe de 6 à 10 $cm^2.mg^{-1}$. Pour le filtre rose,

$R_{dt\alpha}$ varie de 30 à 35 % pour la même variation de μ.

2- une membrane présente de faibles variations du rendement théorique de détection α lorsque l'énergie α passe de 6 à 7,68 MeV. Le filtre rose, par contre, pour la même variation de l'énergie α, présente des écarts allant de 15 % pour le μ le plus fort jusqu'à 30 % pour le μ le plus faible.

Les membranes permettent des rendements théoriques de détection α très élevés et relativement stables avec l'énergie α à détecter, ce qui n'est pas le cas du filtre rose.

6.4. Correction d'autoabsorption dans les membranes

Nous appelons autoabsorption de la membrane, le rapport du nombre de particules α sortant du filtre dans 2 π, au nombre de particules réellement émises dans le filtre et dans 2 π. Cette définition suppose que les particules α sont émises en même quantité dans les deux moitiés de l'angle solide, ce qui est statistiquement exact.

La correction d'autoabsorption ou de pénétration C_α est donc l'inverse du rapport précédent.

$$C_\alpha = \frac{\text{nombre de particules réellement émises dans 2 } \pi}{\text{nombre de particules sortant de la membrane dans 2 } \pi}$$

6.4.1. Correction en fonction de μ

C_α est donné par le tableau 2.5. pour la membrane RAWP. Les énergies α sont celles du RaA' et du RaC' . Le paramètre est le coefficient d'efficacité μ. Le tableau 2.6. donne les mêmes résultats pour le papier filtre rose.

Coefficient d'efficacité μ $cm^2.mg^{-1}$		3	5	7	10	14
C_α	énergie α 6 MeV	1,076	1,045	1,032	1,022	1,017
	énergie α 7,68 MeV	1,05	1,030	1,021	1,015	1,011

Tableau 2.5. Correction d'autoabsorption des particules α dans la membrane RAWP.

Coefficient d'efficacité μ $cm^2.mg^{-1}$		0,2	0,4	0,5	0,7
C_α	énergie α 6 MeV	2,67	1,79	1,60	1,40
	énergie α 7,68 MeV	2,07	1,50	1,38	1,25

Tableau 2.6. Correction d'autoabsorption des particules α dans le papier filtre rose.

La valeur du facteur de correction C_α diminue quand le coefficient d'efficacité μ croit. L'aérosol pénétre de moins en moins dans la membrane. Le dépôt des particules a lieu en surface. Ces résultats confirment les conclusions théoriques du paragraphe 5.1.2. Le dépôt se fait par impact, donc en surface ; le dépôt par diffusion est très faible.

Le filtre rose présente une pénétration très importante d'où un coefficient de correction C_α très grand. Le filtre rose ne permet pas d'effectuer une spectrométrie α correcte, résultat déjà obtenu par J. FONTAN [22].

Les valeurs de C_α obtenues pour le filtre rose sont en bon accord avec celles de PARNIANPOUR [48].

Exemple : pour $\mu = 0,38$ $E_\alpha = 6$ MeV $C_\alpha = 1,7$ $\bar{U} = 2$ m.s^{-1}

$E_\alpha = 7,68$ MeV $C_\alpha = 1,4$

D'après [48] pour $\mu = 0,38$, $E_\alpha = 8,78$ MeV, $C_\alpha = 1,6 \pm 0,1$ avec $\bar{U} = 0,25$ à 1 m.s^{-1}.

6.4.2. Correction en fonction de l'énergie α

Le tableau 2.7. montre l'influence de l'énergie E_0 des particules α sur le coefficient de correction C_α.

Energie E_0 des α	C_α		
	membrane NF30(μ=10)	membrane RAWP(μ=10)	filtre rose μ= 0,40
2	1,105	1,104	5,40
3	1,06	1,062	3,46
4	1,039	1,042	2,57
5	1,029	1,032	2,08
6	1,023	1,023	1,77
7	1,018	1,019	1,58
8	1,014	1,015	1,45
9	1,012	1,011	1,36

Tableau 2.7. Correction C_α en fonction de l'énergie des particules α.

C_α varie de 1,10 à 1,01 lorsque l'énergie E_0 passe de 2 à 9 MeV pour les membranes et pour un même μ. Pour le filtre rose, C_α atteint des valeurs très importantes qui mettent en cause la texture du papier.

7 - CONCLUSION

Notre étude théorique et expérimentale des caractéristiques des membranes capillaires montre qu'elles constituent un excellent support pour la filtration des aérosols radioactifs atmosphériques. Le diamètre du pore et le débit ne doivent pas être trop importants pour conserver un rendement quasi absolu. 1,2 μm constitue, dans notre cas, la dimension limite. Le débit maximal est alors de 100 $l.mn^{-1}$. Pour les aérosols ultra fins, une membrane de diamètre de pore plus petit peut être utilisée (0,3 μm) ; le débit limite est alors de 30 $l.mn^{-1}$. Les rendements théoriques de détection α sont élevés et les corrections d'autoabsorption sont nettement meilleures que celles du plus parfait des filtres à fibres entrelacées.

Nous avons élaboré également une technique de calcul qui permet d'obtenir le spectre α théorique d'un échantillon ainsi que la correction d'autoabsorption associée. L'activité réelle déposée et

les concentrations vraies s'en déduisent. Cette technique demande à être encore perfectionnée ; elle devrait trouver de nombreuses applications dans les laboratoires de mesures radioactives.

Les temps de prélèvement t et de mesure θ, les débits D et les types de membrane étant définis, nous allons maintenant étudier en détail l'appareil et son étalonnage.

CHAPITRE 3

L'APPAREIL DE PRELEVEMENT ET SON ETALONNAGE

Le principe de l'appareil a été donné brièvement dès le début du chapitre 1, mais il convient maintenant d'analyser en détail le fonctionnement d'ensemble et de procéder à l'étalonnage complet.

1 - ENSEMBLE MECANIQUE / 49 7

1.1. Principe de la méthode de mesure

Mécaniquement, il se résume ainsi :

- effectuer des prélèvements de courte durée sur une bande de membrane capillaire des aérosols radioactifs atmosphériques (descendants du radon), puis déplacement rapide sous les détecteurs et comptage.

1.2. Impératifs de base conduisant à la conception de l'ensemble mécanique

L'élaboration de l'appareil nous a conduits à séparer le prélèvement de sa mesure (absorption de gaz radon sur la jonction). La période du RaA (3 mn) et le rejet des descendants du thoron nécessitent d'opérer par prélèvements de courte durée, inférieurs à 30 minutes dans tous les cas. Ces conditions nous obligent à :

a) réduire le temps de transfert du prélèvement sous les détecteurs à la valeur minimale possible et assurer avec précision sa position sous les détecteurs (voir page 14).

b) dans un ensemble de prélèvement, la pompe ou le dispositif de prélèvement ne délivrent un débit constant qu'après un certain temps de marche. Les arrêts répétés sont donc à proscrire. Mais un débit permanent plaque la membrane à l'orifice d'aspiration. Tout déplacement est impossible sans cassure de la bande de membrane. Un dispositif de déflexion de la veine fluide est nécessaire.

c) la totalité de l'air prélevé doit passer par l'orifice d'entrée et la membrane, ce qui nécessite une étanchéité parfaite au niveau de la bande de membrane. Mais ce dispositif doit également libérer la bande de membrane au moment des déplacements.

d) le moteur d'entrainement du papier doit aussi fonctionner en permanence pour éviter les arrêts répétés.

e) tous les organes de commande mécaniques et électriques doivent, si possible, être au repos pendant toute la durée du comptage.

1.3. Composition de l'ensemble mécanique et fonction des divers organes

1.3.1. Composition de l'ensemble mécanique

La figure 3.1. représente le schéma de principe de l'ensemble mécanique. Il comprend :

a- une came horaire (CH) et son moteur d'entraînement.

La came définit les temps de prélèvement et de transfert donc le cycle de marche de l'appareil.

b- le dispositif de prélèvement.

La membrane (M) est maintenue de façon étanche entre le cône et le conduit de prélèvement (C) qui coulisse dans l'orifice d'entrée. Un poinçon (P) perfore la membrane au milieu de sa largeur et à une distance fixe D de l'axe de prélèvement. Poinçon (P) et conduit (C) sont solidaires de l'électro-aimant (EA) qui, en position de travail, assure la liberté de déplacement de la bande de membrane. Les électrovannes (V_p et V_S) assurent la déflexion de la veine fluide pendant ce déplacement.

c- l'ensemble de détection

Le compteur α est un détecteur à semi-conducteur du type barrière de surface, placé au-dessus de la membrane (surface utile 9,5 cm^2). Le détecteur β est un compteur Geiger Müller à

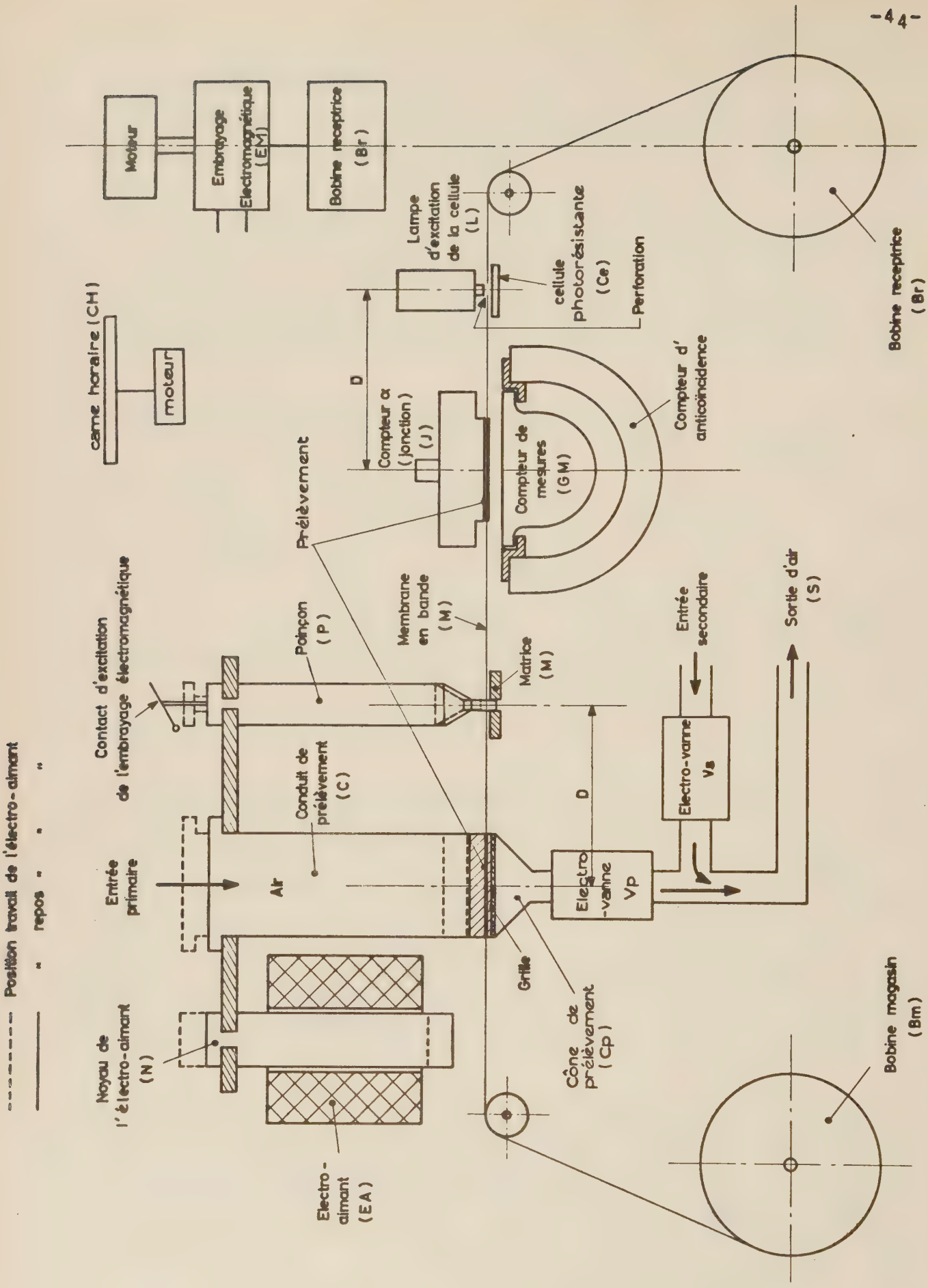


Fig 3.1 - ENSEMBLE MECANIQUE

Schéma de principe

fenêtre, entouré d'un compteur de garde, et placé au-dessous de la membrane. La détection β s'effectue à travers la trame de la membrane.

d- un couple lampe (L), cellule photorésistante (ce)

Il assure la position correcte de l'échantillon sous les détecteurs par repérage de la perforation.

e- l'ensemble d'entraînement

Il se compose du moteur d'entraînement couplé à la bobine réceptrice par l'intermédiaire de l'embrayage électromagnétique (EM). L'embrayage est commandé à partir de la position de travail du poinçon (P).

1.3.2. Fonctionnement de l'ensemble mécanique

L'air est aspiré sur la membrane fixe pendant un temps constant défini par la came horaire (CH). A la fin de ce temps, la came délivre une impulsion de commande qui, par l'intermédiaire de relais, actionne l'électro-aimant (EA), le poinçon (P), l'embrayage électromagnétique (EM) et les électrovannes (V_P et V_S), assurant ainsi le déplacement rapide de l'échantillon sous les détecteurs. L'arrêt et la position exacte de l'échantillon sont assurés lorsque la perforation de repère se trouve dans l'axe du couple lampe-cellule. A la seconde impulsion délivrée par la came horaire, tous les organes reviennent à la position de repos. Un second prélèvement commence pendant que s'effectue la mesure du premier.

2 - ENSEMBLE ELECTRONIQUE [50, 51]

L'ensemble électronique, entièrement à transistors, assure les fonctions classiques, d'amplification, discrimination, mise en forme et comptage par échelles ou par ictomètres linéaires ou logarithmiques avec enregistrement. Le synoptique de l'ensemble électronique est représenté par la figure 3.2.

2.1. Séparation du RaA et du RaC'

Elle se fait aussitôt après la discrimination, dans un sélecteur à deux canaux, avec seuil de séparation réglable et étalonné en énergie suivant la valeur du seuil de discrimination.

Si B est la bande d'énergie totale amplifiée, B_1 la largeur de bande du canal 1, B_2 celle du canal 2, on a toujours :

$$B = B_1 + B_2$$

Le sélecteur offre donc la possibilité d'isoler le spectre α d'un radionucléide quelconque dans la gamme des énergies analysées. C'est un élément MSA 11 du standard rénatran C.E.A. (modifié).

2.2. Sélection du RaB

A une émission β du RaC, correspond $1{,}64.10^{-4}$ seconde après, en moyenne, une émission α du RaC'. A cette pseudo-coïncidence, déjà utilisée dans un appareil de mesure de la contamination α, [7], nous avons préféré un dispositif simple effectuant la différence :

comptage β total - comptage β RaC = comptage β RaB

Pour obtenir le comptage β du RaB, nous corrigeons l'amplitude de mise en forme des impulsions α du RaC'.

Si $R_{d\alpha}$ est le rendement de détection α du RaC' et $R_{d\beta}$ le rendement de détection β du RaC, l'amplitude μ des impulsions α corrigées sera telle que :

$$R_{d\alpha} \cdot \mu = R_{d\beta} \cdot \mu_\beta$$

où μ_β est l'amplitude des impulsions β du RaC

$$\mu = \frac{R_{d\beta}}{R_{d\alpha}} \mu_\beta = k \mu_\beta$$

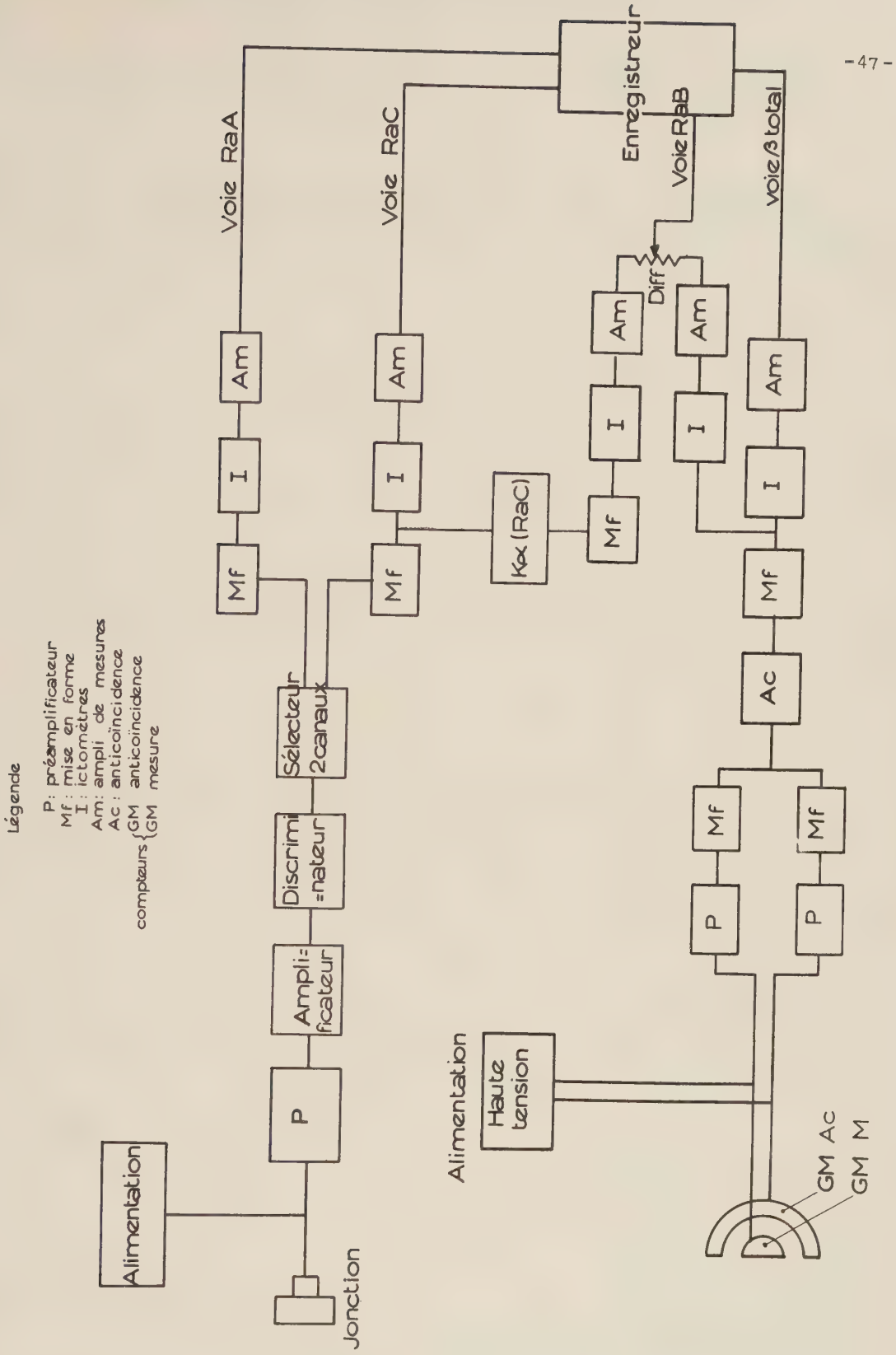


Fig. 3_2 SYNOPTIQUE DE L'ENSEMBLE ELECTRONIQUE DE MESURE

k est le coefficient de correction.

L'erreur relative sur μ est la somme des erreurs relatives sur $R_{d\alpha}$ et $R_{d\beta}$.

La différence est effectuée dans un ictomètre linéaire différentiel, le courant de sortie attaquant directement l'enregistreur.

2.3. Commande des mesures

La mesure de l'échantillon peut être instantanée (ictomètre à faible constante de temps) ou s'effectuer pendant un temps de durée variable, mais inférieur ou au plus égal au temps de prélèvement (échelles ou ictomètres à constante de temps infinie).

Dans les deux cas, la came horaire (CH) commande la mesure. L'impulsion de fin de transfert de l'échantillon est alors l'impulsion de commande.

2.4. Remarques

1- Les ensembles de programmation, et principalement les tiroirs programme (Ex :TP1) du standard rénatran CEA, remplaceraient avantageusement la came horaire. Ces tiroirs n'existaient pas au moment de la réalisation de l'appareil.

2- L'amplificateur de voie α possède une sortie double qui permet l'attaque permanente d'une échelle de comptage, d'un ictomètre ou d'un sélecteur d'amplitude multicanaux.

3 - RECAPITULATIF DES CARACTERISTIQUES DE L'APPAREIL

Composition

deux éléments séparés :

- ensemble de prélèvement
- ensemble électronique de mesure

ces deux unités peuvent être portables en version industrielle

Echantillonnage

- bande de membrane semi-fixe
- déplacement à intervalle régulier de la bande de membrane

prélèvement de durée 3-5-10 ... minutes

. mesure et prélèvement séparés mais simultanés.	(réglable) mesure instantanée ou intégrée sur 3 mn, déplacement de durée 20 secondes.
. surface de prélèvement : 8 cm^2	
Aspiration	
. par pompe, col ionique, ou tout autre dispositif auxiliaire raccordé à l'unité de prélèvement.	0 à 30 $l.mn^{-1}$ avec membrane MF 30, 0 à 60 $l.mn^{-1}$ avec membrane MF 150
. dépression suivant débit et type de membrane.	0 à 100 $l.mn^{-1}$ avec membrane RAWP.
Matériau filtrant	
Bande de membrane	MF 30 - MF 150 ou RAWP
. type	
. largeur	50 mm
. porosité	82 %
. diamètre du pore	0,3 µm-1,2 µm-1,2µm
. rendement de collection	100 % 99 à 100 %
. longueur	bobines de 30 mètres
Détecteurs	
. détecteur α	
compteur à semi-conducteur placé au-dessus de la membrane	
type	barrière de surface (Ortec)
surface utile	9,5 cm^2
résolution dans l'air et placé en position normale de mesure	largeur : 280 keV (pic ^{241}Am).
. détecteur β	
compteur Geïger Müller à fenêtre placé au-dessous de la membrane	
type	18546 (La Radiotechnique)
surface utile	20 cm^2
épaisseur de la fenêtre	4 $mg.cm^{-2}$ + 1 $mg.cm^{-2}$ de mylar (écran électrostatique)
compteur de garde	18548 (La Radiotechnique).

Electronique

. entièrement à transistors . deux canaux α séparés . ictomètres linéaires ou logarithmiques . Possibilités pour échelles de comptage et sélecteur d'amplitude multicanaux	2 canaux baladeurs par réglage du seuil de séparation
. Enregistrement des résultats sur enregistreur multivoies.	enregistreur de 0,1 à 10^6 impulsion $.s^{-1}$

4 - ETALONNAGE DE L'APPAREIL

Le rendement de détection R_d, ou probabilité pour qu'une particule pénétre dans le volume sensible du compteur, est donné, pour les détecteurs qui nous occupent, par les relations suivantes, reliant l'activité mesurée A_m à l'activité réelle A_r:

détection α $$R_{d\alpha} = \frac{A_m}{A_r} = G_\alpha \cdot F_t \cdot F \cdot C_\alpha$$

détection β $$R_{d\beta} = \frac{A_m}{A_r} = G_d \cdot F_t \cdot F \cdot F_a$$

G_α est la géométrie de détection, F_t le facteur de transmission, F_a le facteur de transmission β par la membrane, C_α la correction d'autoabsorption des α par la membrane (C_α a été étudié au chapitre 2).

$F = F_d \cdot F_{rd} \cdot F_r$ est le produit du facteur de diffusion F_d, du facteur de rétrodiffusion F_{rd} et du facteur de réflexion F_r.

4.1. Etalonnage du détecteur α

4.1.1. Facteur correctif F

Nous avons déterminé expérimentalement que le facteur correctif F est négligeable dans les conditions normales d'utilisation de l'appareil.

4.1.2. Correction de géométrie et de transmission

G_d et F_t sont difficiles à dissocier. Ils sont définis globalement par mesure directe de sources minces α étalonnées à ± 1 %. Ces sources sont mesurées dans la même géométrie que le prélèvement. La variation de $(G_d \cdot F_t) = R_{d\alpha}$ en fonction de l'énergie des raies α est donnée par la figure 3.3. Le point à 8,78 MeV est obtenu par sommation du pic correspondant, après comparaison avec une mesure à la chambre à grille de la même source.

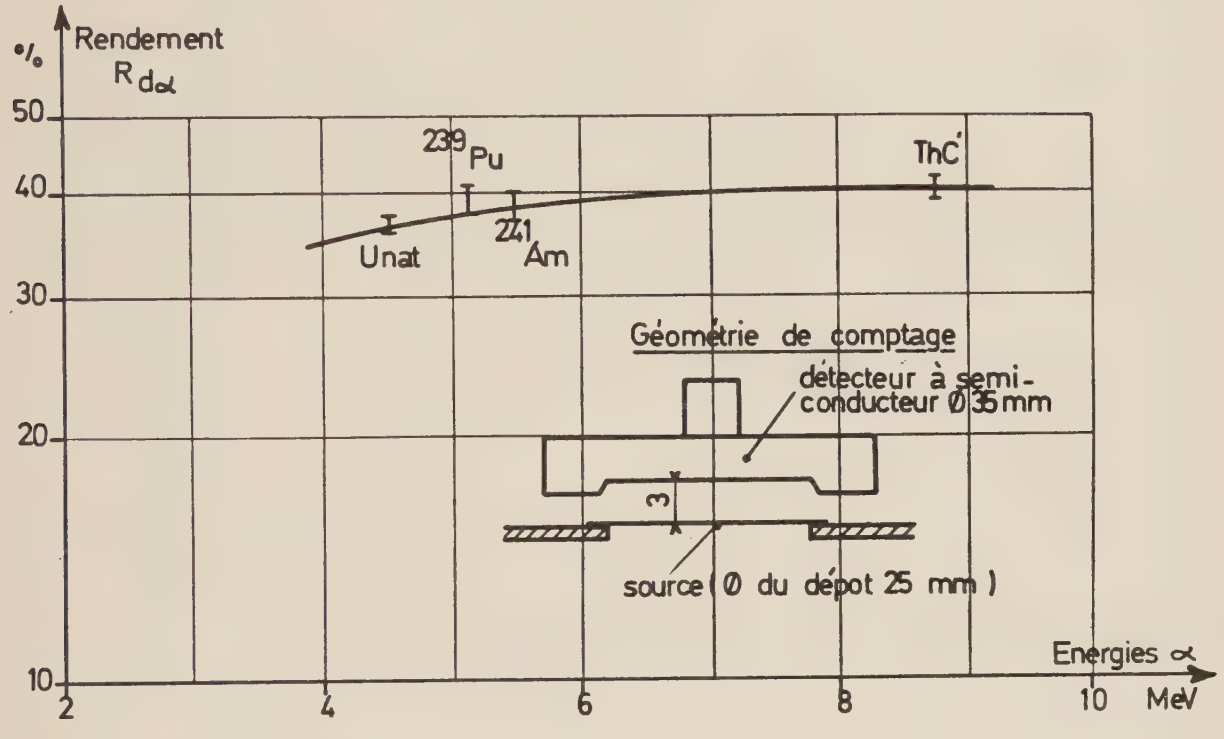


Figure 3.3. Rendement de détection du compteur α.

Pour le Ra A et le RaC', on adopte un rendement unique (énergies respectives 6 et 7,68 MeV).

$$R_{d\alpha} = 40 \pm 3\ \%$$

Cette valeur est à rapprocher des valeurs théoriques obtenues par la méthode de Monte Carlo dans le chapitre 2 (membrane RAWP).

$R_{d\alpha}$ (6 MeV) = 45 % $R_{d\alpha}$ (7,26 MeV) = 46,5

Nous adapterons la valeur de 40 % dans toutes nos mesures.

4.2. Etalonnage du détecteur β

La présence du détecteur à jonction au-dessus de la membrane crée une réflexion non négligeable des particules β vers le compteur G.M. Le facteur F n'est donc plus égal à 1.

4.2.1. Transmission F_a des β à travers la membrane

Le facteur de transmission du rayonnement β à travers un matériau peut se déterminer à partir de la formule de GLEASON, TAYLOR et TABERN [52] applicable au domaine d'énergies de 0,1 à 3,5 MeV (énergies maximales β).

$$F_a = e^{-17\, d/E_{max}^{1,43}}$$

Le facteur de transmission F_a est donné figure 3.4.

4.2.2. Rendement de détection du compteur β

Le rendement de détection β, $R_{d\beta}$ est déterminé à l'aide de sources étalonnées à ± 1 %. Ces sources ont un diamètre de 30 mm correspondant sensiblement au diamètre du prélèvement atmosphérique. Le détecteur à jonction est placé au-dessus de la source en position normale et joue son rôle de réflecteur. Le rendement obtenu est donc le produit :

$$(G_d \cdot F_t)\, F$$

La variation de ce produit en fonction de l'énergie maximale β est représentée par la figure 3.5. qui montre également la géométrie de détection.

4.2.3. Rendement effectif de détection β : $R_{d\beta}$

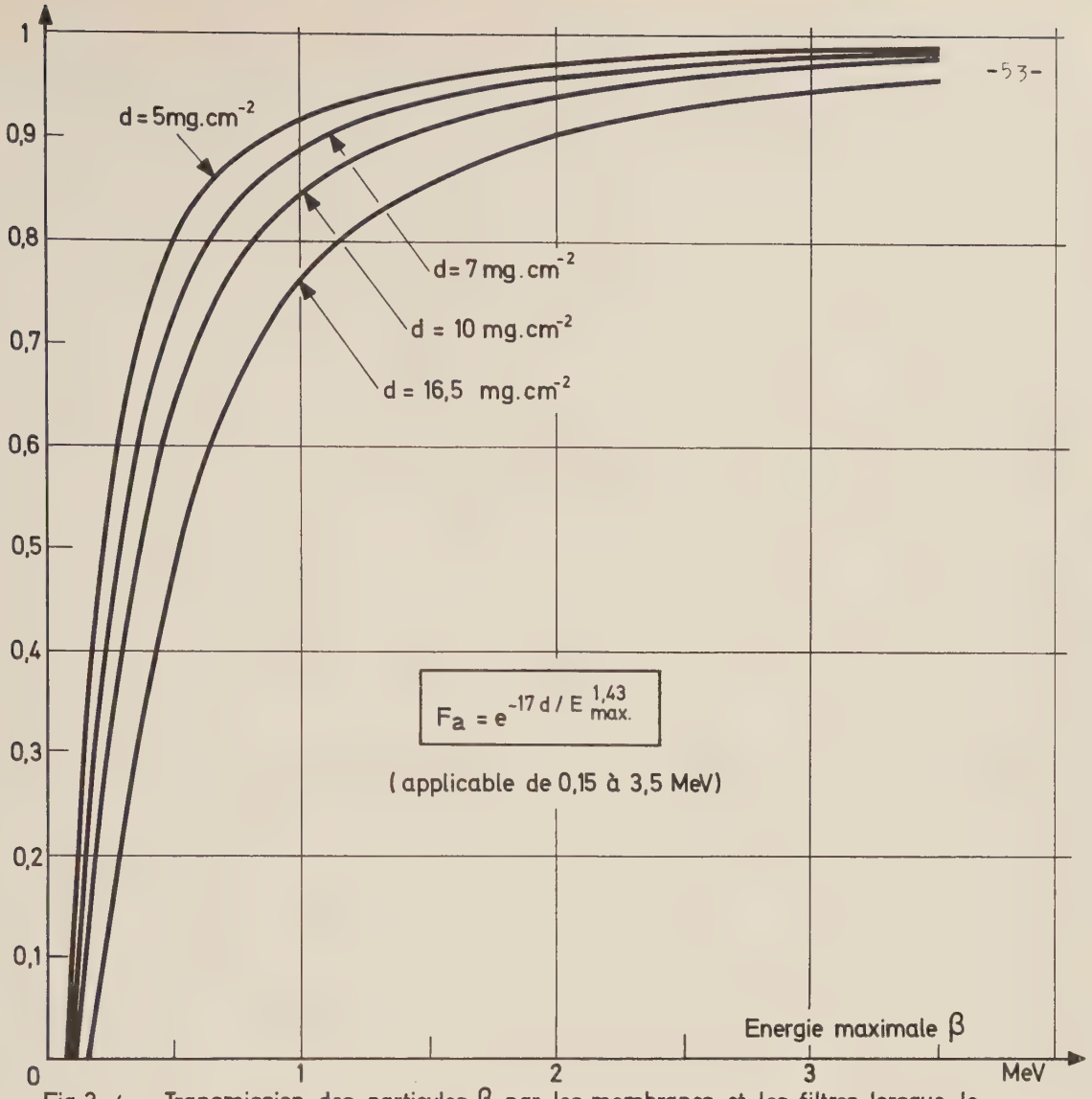


Fig.3_4 _ Transmission des particules β par les membranes et les filtres lorsque le comptage s'effectue à travers la trame

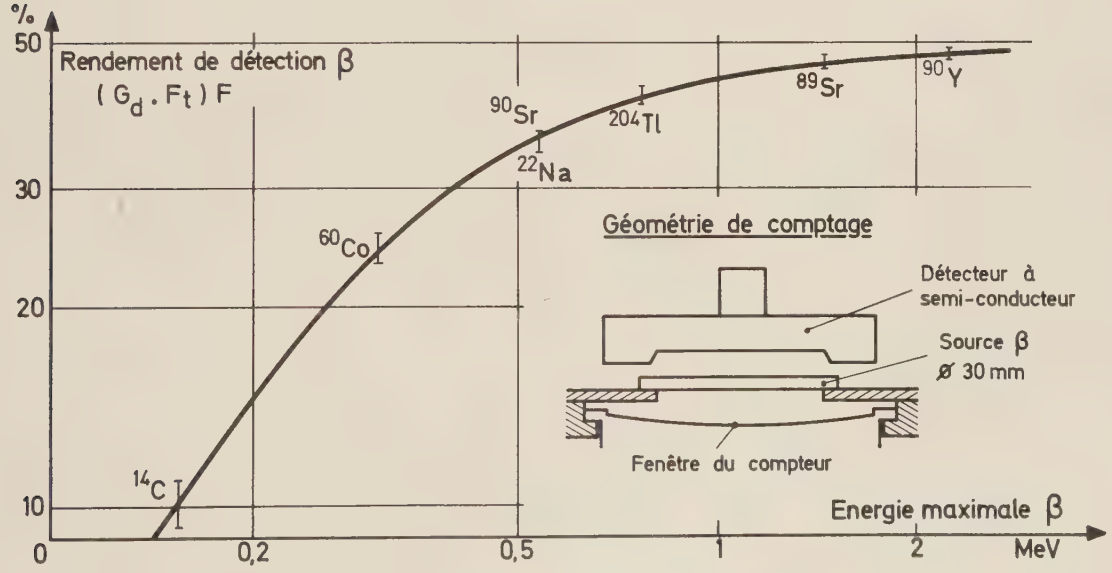


Fig. 3_5_ Rendement de détection du compteur β

Le rendement effectif de détection β est le produit des corrections précédentes :

$$R_{d\beta} = \frac{A_m}{A_r} = F_a \, (G_d \, . \, F_t) \, F$$

L'erreur relative sur le rendement s'écrit :

$$\frac{\Delta R_{d\beta}}{R_{d\beta}} = \frac{\Delta F_a}{F_a} + \frac{\Delta (G_d \, . \, F_t) \, F}{(G_d \, . \, F_t) \, F}$$

avec $\frac{\Delta F_a}{F_a} = 17 \left[\frac{\Delta d}{d} + 1{,}43 \, \frac{\Delta E}{E} \right]$

et $\frac{\Delta (G_d \, . \, F_t) \, F}{(G_d \, . \, F_t) \, F} = \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta A}{A} + 0{,}693 \, \frac{\Delta T t}{T^2}$

$\frac{\Delta N}{N}$ est l'erreur de comptage. Elle est inférieure à 1 % avec une probabilité de 0,9 pour un temps de comptage suffisamment long (mesure en précoups) ⌊ 53 ⌋.

$\frac{\Delta A}{A}$ est l'erreur sur l'activité des sources β étalonnées (sources du LMR/SACLAY à $\pm$ 1 %). Le dernier terme est fonction du temps de décroissance de la source depuis le jour de son étalonnage jusqu'au jour de sa mesure. Pour t = 1,5 T on a $0{,}693 \, \frac{t}{T} \approx 1$ Le dernier terme vaut alors $\frac{\Delta T}{T}$ ⌊ 54 ⌋. Finalement on a :

$$R_{d\beta} \text{ en } \% = F_a \, (G_d \, . \, F_t) \, F \pm 5 \, \%$$

F_a et $(G_d \, . \, F_t) \, F$ seront lus respectivement sur les figures 3.4. et 3.5.

4.3. Rendement effectif de détection β applicable à RaB et RaC

Ce rendement est évalué à partir des schémas de désintégration du RaB et du RaC (tableau 3 annexe 1). Nous appliquons le rendement effectif β à chaque raie β, et nous tenons compte des autres rayonnements ainsi que des pourcentages d'émission. (voir tableau A.1.3. Annexe 1). Les résultats sont consignés dans le tableau 3.1.

Rayonnement	Rendement effectif de détection β	
	RaB	RaC
β	0,335	0,418
ϑ	0,037	0,085
électron de conversion	0,012	0,01
Total	0,384	0,504

Tableau 3.1. Rendement effectif de détection β du RaB et du RaC

Nous adoptons : RaB = 38 ± 5 %
RaC = 50 ± 5 %

4.4. Corrections diverses

4.4.1. Correction du temps de transfert et du temps de mesure de l'échantillon

4.4.1.1. Correction du temps de transfert

Le temps de transfert est de 20 secondes. L'enregistrement du RaA (mesure instantanée) a lieu 4 secondes après l'arrêt du prélèvement, soit pour le taux de comptage $\mathcal{F}_2$

$$\mathcal{F}_2\,(24) = \mathcal{F}_2\,(t, 0)\cdot e^{-\frac{0{,}693 \times 24}{185}}$$

La correction est de 8,3 %.

4.4.1.2. Correction de décroissance

Si A_0 est l'activité de l'échantillon au temps t = 0 d'arrêt du prélèvement, l'activité A (θ) après un temps θ de comptage est :

$$A(\theta) = A_0 \, e^{-\lambda\theta}$$

Pendant le temps θ, l'activité mesurée est l'activité moyenne.

$$\bar{A} = A_0 \, \frac{1}{\theta} \int_0^{\theta} e^{-\lambda t} \, dt$$

Posons $\Delta = \frac{\theta}{T}$ et comparons ces deux activités

C (Δ), a été calculé en fonction des valeurs de Δ 54 7, figure 3.6.

Pour un temps de mesure de 3 minutes la correction à apporter est de :

pour le RaA C (Δ) = 1,39

Ainsi, un temps de comptage de 3 minutes, après transfert de l'échantillon sous les détecteurs, entraîne une correction totale de :

C (RaA) = 1,47

$$\sigma_2 (t, 0) = \sigma_2 (\theta) \times 1,47$$

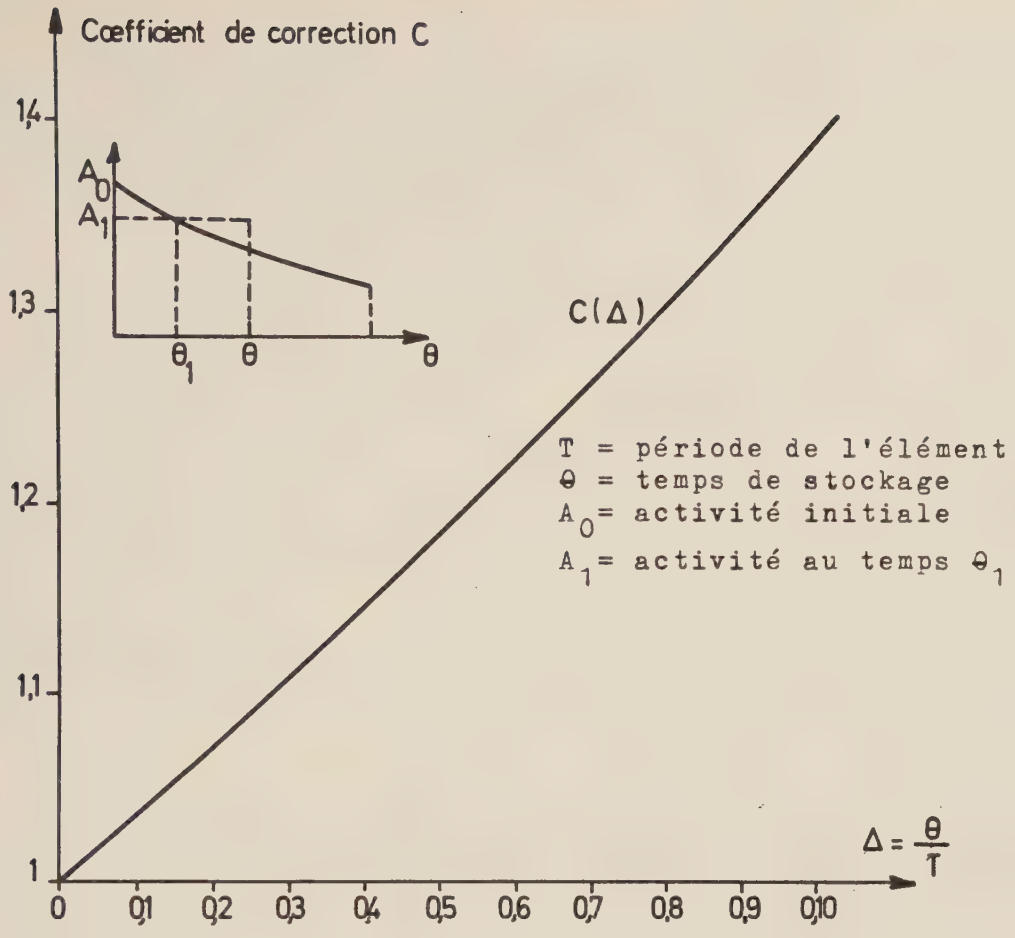


figure 3.6. Correction du temps de comptage (RaA) / 54 7

4.4.2. Correction du dégradé énergétique du RaC'

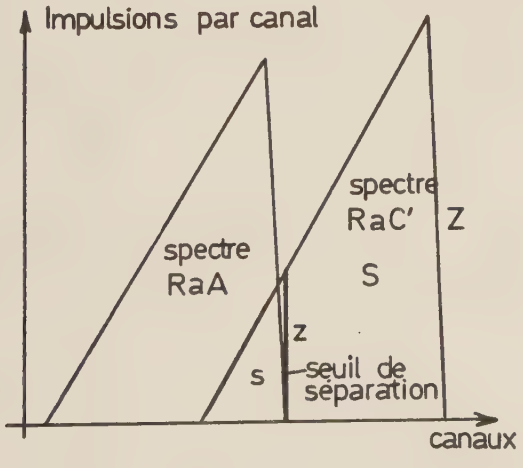


Figure 3.7. Mauvaise séparation du RaA et du RaC' . Correction du dégradé énergétique

Si les spectres du RaA et du RaC' présentent un dégradé énergétique important, ils sont mal séparés et une fraction du spectre du RaC' pénètre dans le spectre du RaA (figure 3.7.).

Si s est la surface de la fraction du spectre du RaC' pénétrant dans le spectre

du RaA , S sa surface au-delà du seuil de séparation d'ordonnée z, la correction s'écrit, en appelant Z l'ordonnée maximale du spectre du RaC' :

$$\frac{s}{S} = \frac{z^2}{Z^2 - z^2}$$

Exemple :

Si Z = 100 impulsion .canal^{-1} et z = 10 s/S = 1 %.

Les spectres sont assimilés à des triangles parfaits ce qui n'est pas le cas réel. Mais la précision obtenue est suffisante.

4.5. Etalonnage en énergie du seuil de séparation

Le seuil de séparation des canaux du sélecteur correspond, pour une position fixe, à une énergie bien définie. Cependant, si le seuil inférieur ou seuil de discrimination varie, il entraîne un déplacement du canal RaA tout entier. Pour une même position, le seuil de séparation ne présente plus la même énergie de coupure.

L'étalonnage est représenté figure 3.8. Chaque droite correspond à une valeur définie du seuil inférieur de discrimination. x divisions du seuil de séparation représentent une énergie de coupure E_x. (échelle 2, réseau 2). La droite 1 correspond à l'étalonnage du générateur test de contrôle de l'ensemble amplificateur. Droite et réseau ne sont définis que pour une seule valeur du gain et des constantes de temps de l'amplificateur.

Pour les réglages adoptés nous avons :

1 division du seuil de séparation = 15 keV

C'est l'imprécision sur la séparation des deux canaux du sélecteur.

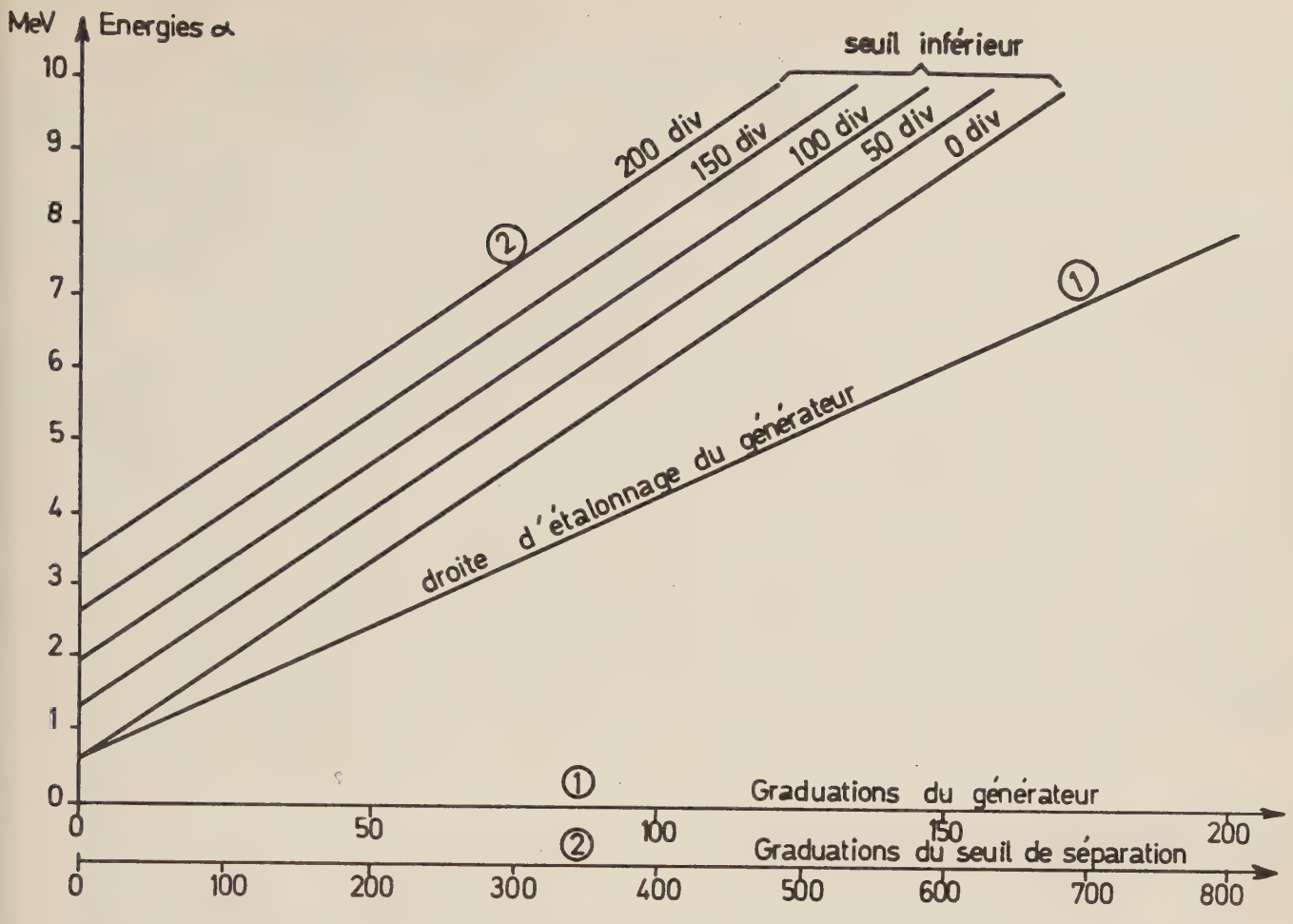


Figure 3.8. Etalonnage en énergie du seuil de séparation et du générateur test.

5 - SENSIBILITE DE L'APPAREIL

La sensibilité de l'appareil, en $Ci.m^{-3}$, est limitée par la surface de la jonction (prélèvement de 8 cm^2) et par le bruit de fond de la voie β. Elle est fonction également du débit, des temps de prélèvement et de mesure, et du type de membrane utilisée.

5.1. Sensibilité théorique

Nous définissons la sensibilité théorique de l'appareil comme la concentration minimale décelable de l'un quelconque des descendants du radon qui permet, dans tous les cas, de conserver la précision de mesure imposée.

La sensibilité théorique, limitée par le bruit de fond de la voie β, est donnée par le tableau 3.2. La précision de mesure est

la somme de la précision statistique de comptage et de la précision d'étalonnage.

Temps de prélèvement en minutes	Débit de prélèvement en litres par minute						
	5	10	20	30	50	100	500
3	2.10^{-8}	10^{-8}	5.10^{-9}	3.10^{-9}	2.10^{-9}	10^{-9}	2.10^{-10}
5	$1,2.10^{-8}$	6.10^{-9}	3.10^{-9}	2.10^{-9}	$1,2.10^{-9}$	6.10^{-10}	$1,2.10^{-10}$
10	6.10^{-9}	3.10^{-9}	$1,5.10^{-9}$	10^{-9}	6.10^{-10}	3.10^{-10}	6.10^{-11}
Probabilité 0,9 précision de mesure $\leq \pm 20$ %							

Tableau 3.2. Sensibilité théorique de l'appareil en $Ci.m^{-3}$ pour diverses valeurs de débits et de temps de prélèvement

5.2. Sensibilité pratique

La sensibilité est alors définie comme la concentration, en $Ci.m^{-3}$, donnant un taux de comptage égal au bruit de fond (tableau 3.3.).

Temps de prélèvement en minutes	Débit de prélèvement en litres par minute						
	5	10	20	30	50	100	500
3	7.10^{-10}	3.10^{-10}	$1,6.10^{-10}$	10^{-10}	7.10^{-11}	3.10^{-11}	7.10^{-12}
5	4.10^{-10}	2.10^{-10}	10^{-10}	6.10^{-11}	4.10^{-11}	2.10^{-11}	4.10^{-12}
10	2.10^{-10}	10^{-10}	5.10^{-11}	3.10^{-11}	2.10^{-11}	10^{-11}	2.10^{-12}
Concentrations donnant un comptage égal au bruit de fond							

Tableau 3.3. Sensibilité pratique de l'appareil en $Ci.m^{-3}$ pour diverses valeurs de débit et de temps de prélèvement.

Dans les deux cas,la sensibilité est rapidement limitée par le type de membrane et le débit.

- membrane MF 30 - débit limite 30 l. mn^{-1}
- membrane RAWP - débit limite 100 l. mn^{-1}

La mesure des concentrations atmosphériques en descendants du radon ne peut se faire qu'avec une membrane RAWP et un temps de prélèvement de 10 minutes.

CHAPITRE 4

LE RADON ET LA FILIATION RADON - RaA

L'appareil que nous venons de décrire dans le chapitre précédent est spécialisé pour la mesure en continu de la concentration de chaque descendant à vie courte du radon (RaA , RaB , RaC et C'). Le gaz radon n'est pas mesuré, ce qui suppose implicitement qu'il est toujours en équilibre radioactif avec le RaA qui, sur la membrane, devient l'élément de référence.

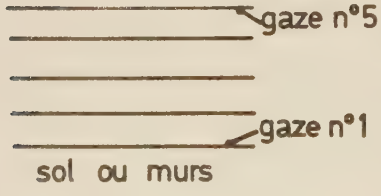
Nous nous proposons donc dans ce chapitre de vérifier cette hypothèse et d'en définir les limites de validité.

I- LE DEGAGEMENT DU RADON DU SOL ET DES MATERIAUX

Le radon émane du sol et des matériaux qui nous entourent. Il est donc nécessaire de préciser si cette émission est relative au gaz seul ou si elle s'accompagne d'une fraction des descendants (principalement Ra A).

1.1. Méthode de mesure

La méthode de mesure est celle utilisée par SERVANT [37] car elle est simple. Nous appliquons des couches de gaze cellulosique sur la surface à étudier.



La gaze n° 1 doit recueillir les descendants solides. Les couches 2,3 et 4 servent à isoler la couche 5 de la couche 1.

L'activité α de chaque couche est mesurée avec un détecteur à scintillation de 90 cm^2 de surface utile. Chaque échantillon est contrôlé avant son dépôt.

La précision de mesure de la méthode utilisée est meilleure que celle obtenue avec des chambres d'ionisation à circulation

ou les ballons scintillants, car le temps de balayage conduit à une formation inévitable et non négligeable de RaA.

1.2. Résultats des mesures

Sur 30 mesures, aucune radioactivité n'a été observée sur les couches 1, 2 et 3. Les couches 4 et 5 présentent une activité α dont l'analyse spectrométrique précise bien qu'il s'agit du dépôt actif du radon (RaC').

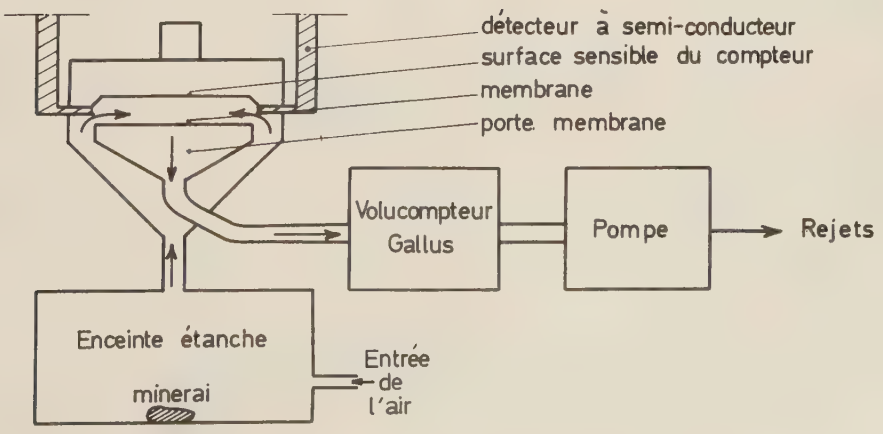
L'activité déposée sur la couche 5 se chiffre entre 5.10^{-10} et 5.10^{-11} Ci à + 20 %, ce qui suppose un volume moyen d'échange de 10 à 100 m^3 d'air pour une concentration moyenne en descendants de 5.10^{-11} $Ci.m^{-3}$ et un dépôt de 10 à 20 %.

1.3. Conclusions

1- Ces mesures montrent que le radon n'est pas accompagné de son dépôt actif à sa sortie du sol ou des divers matériaux (murs). Elles confirment les résultats de SERVANT [37].

2- Il semble que le dépôt des descendants du radon soit important même pendant les périodes de convection intense. Des mesures systématiques seraient nécessaires pour préciser ces résultats. Les dépôts les plus actifs ont été recueillis les jours de forte turbulence (grand volume d'échange) et lorsque l'humidité relative est élevée. Tous les échantillons analysés présentaient une activité déposée. Le dépôt des descendants du radon est donc un phénomène permanent.

2 - ADSORPTION DU GAZ RADON



Au cours de l'élaboration de l'appareil et dans sa phase primitive, le détecteur à semi-conducteur était placé au-dessus du prélèvement (figure 4.1.). L'air de l'enceinte, enrichi en radon par le minerai, passait à travers la membrane où se déposaient les descendants. L'échantillon était donc analysé tout au long de sa formation.

Les spectres α obtenus dans ces conditions présentaient un dédoublement des pics correspondant au RaA et au RaC' (figure 4.2. a).

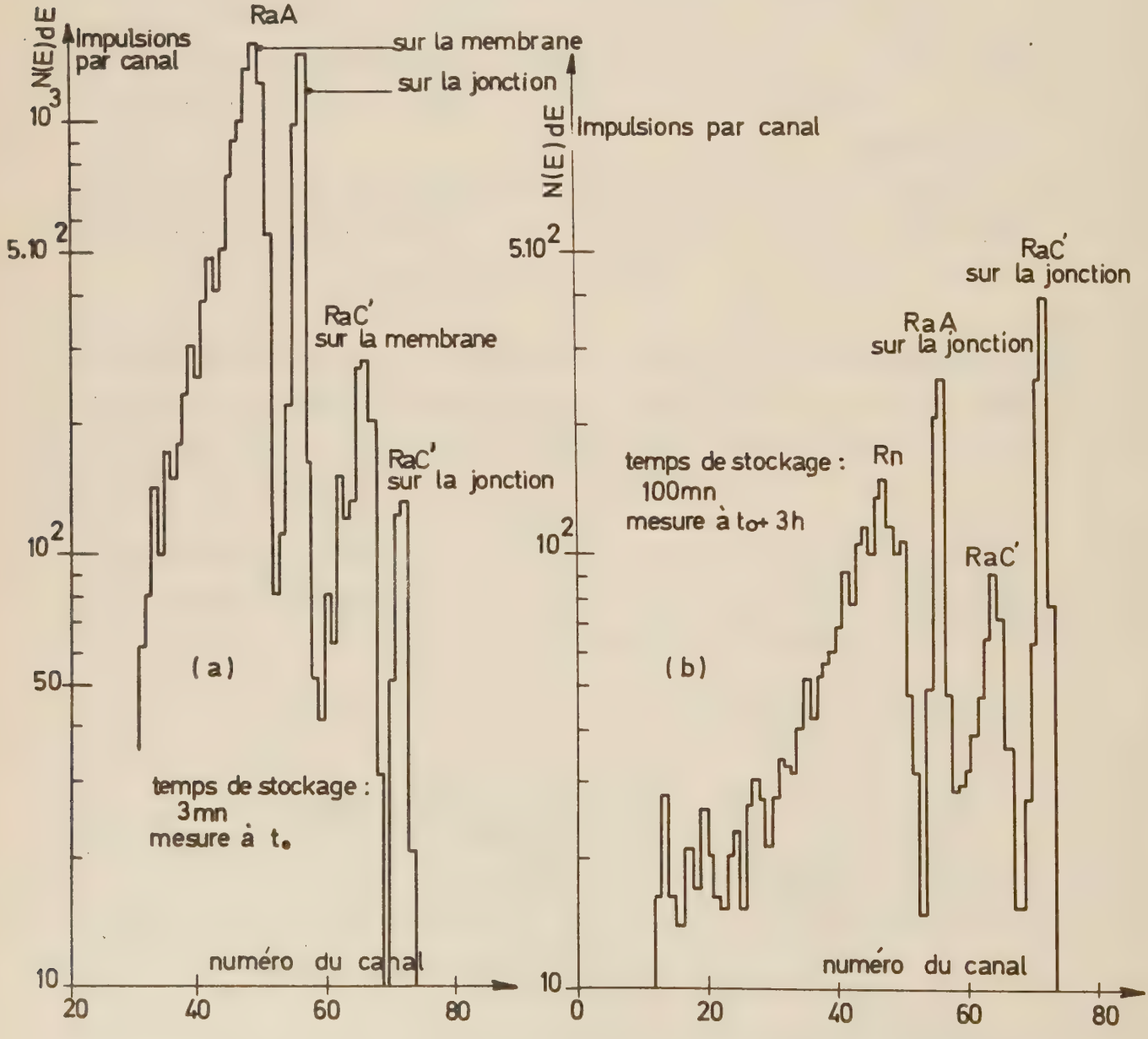


Figure 4.2. Etude de l'adsorption du radon sur un détecteur à semi-conducteur du type barrière de surface.

D'après les étalonnages en énergie du sélecteur d'amplitude, chaque pic correspondait à une même énergie mesurée dans l'air et sous vide. Comme la mesure n'avait lieu que dans l'air, le pic sous vide ne pouvait s'expliquer que par la présence de dépôt actif sur la surface de la jonction. Cependant l'analyse du bruit de fond montrait que le RaA était encore présent 1 heure après l'arrêt du prélèvement (20 périodes de décroissance). Comme le RaA ne pouvait provenir que du radon, nous avons émis l'hypothèse d'une adsorption de radon dans la jonction, ce que confirmait le spectre de la figure 4.2 b). Il y apparait le pic du radon mesuré sous vide.

Nous avons répété l'expérience en plaçant la jonction dans une cloche à vide. Chaque mise sous vide était suivi d'un spectre de bruit de fond. En procédant ainsi et après plusieurs vides successifs, nous avons mis en évidence une désorption exponentielle de 7 heures de période (moyenne de 5 expériences) (fig. 4.3.). En conclusion nous avons séparé le prélèvement et la mesure de l'échantillon.

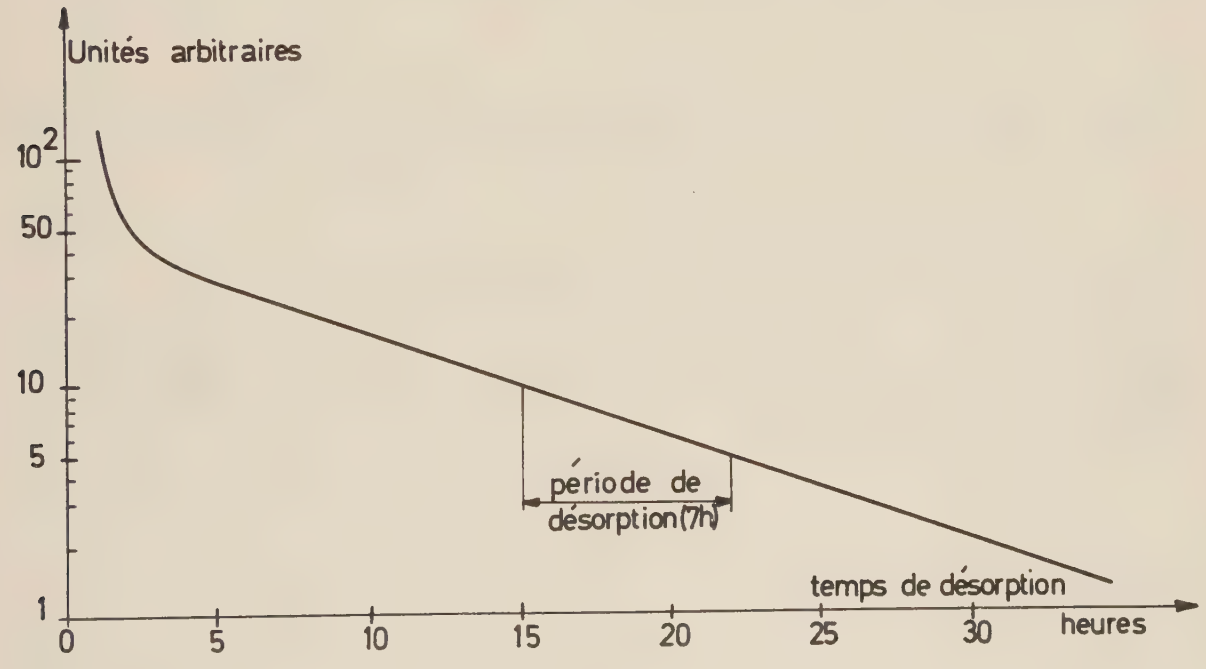


Figure 4.3. courbe de désorption du radon adsorbé sur la surface d'une jonction à barrière de surface.

3 - ETUDE DU DESEQUILIBRE ENTRE RADON ET RaA

3.1. Etude théorique

Dans le premier chapitre nous avons développé les équations générales d'une filiation (formules A_1 et A_2 de l'annexe 2). Si nous appliquons ces formules à l'évolution du radon et du RaA dans l'atmosphère, nous obtenons dans le cas de l'équilibre radioactif :

<u>radon</u> $\quad N_1(t) = N_{1,0} = \text{constante}$

<u>Ra A</u> $\quad N_2(t) = \dfrac{\lambda_1 N_{1,0}}{\lambda_2}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + N_{2,0}\, e^{-\lambda_2 t}$

$N_{1,0}$ est le nombre d'atomes de radon existant à l'instant initial $t = t_0$ dans le volume unitaire V. Pour un temps d'évolution infini, il vient :

$$\lambda_1 N_{1,0} = \lambda_2 N_{2,\infty}$$

Posons $\quad q_2 = \dfrac{\lambda_2 N_2(t)}{\lambda_1 N_{1,0}} = \dfrac{\text{activité du RaA au temps t}}{\text{activité du radon au temps t = 0}}$

La valeur que prend q_2 en fonction du temps, traduit l'évolution du RaA vis-à-vis du radon depuis l'instant initial (figure 4.4.). Le nombre d'atomes de radon est supposé constant et égal à sa valeur à l'instant initial, tandis que nous donnons plusieurs valeurs à $N_{2,0}$

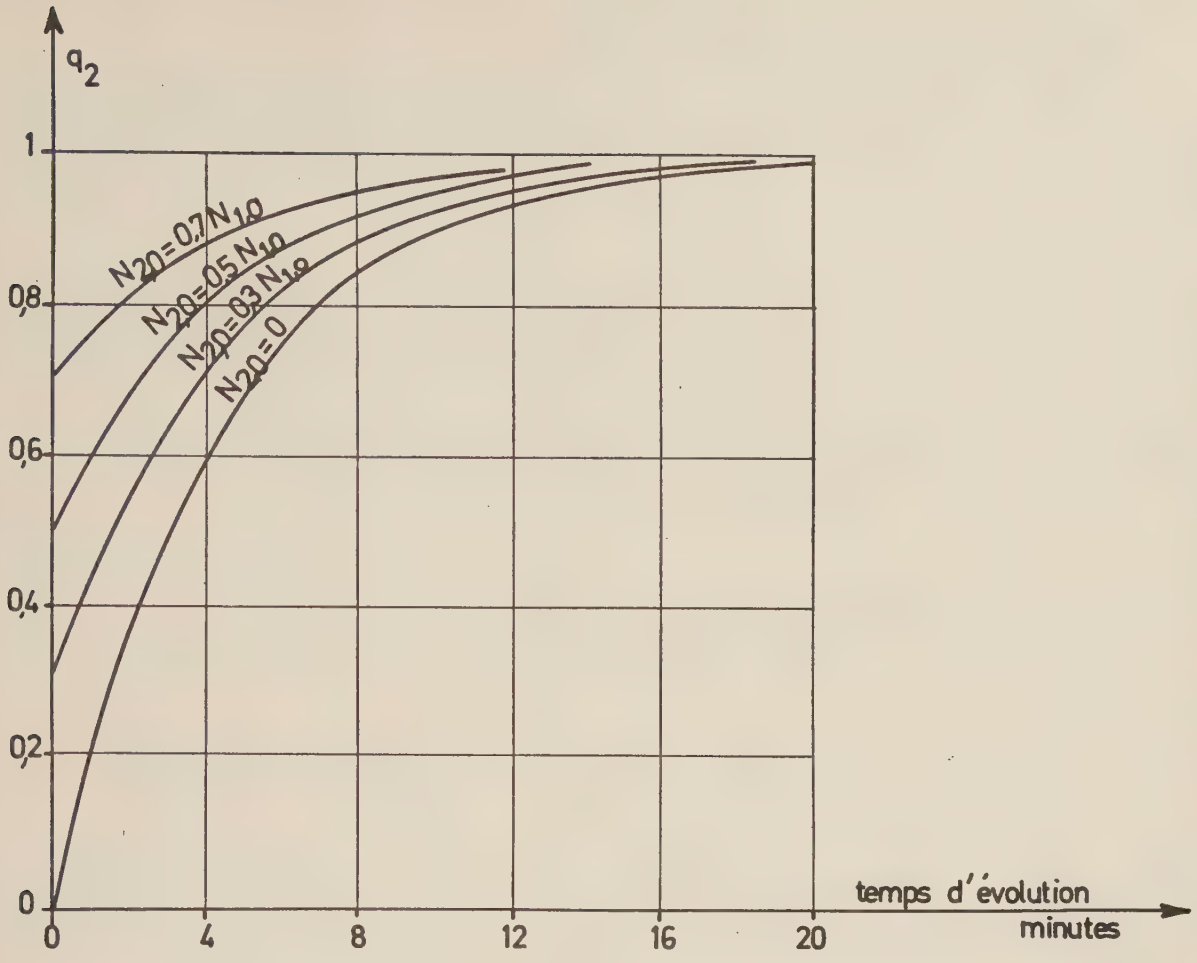


Figure 4.4-Evolution théorique du RaA dans l'atmosphère (cas de l'équilibre radioactif).

Nous constatons que, théoriquement et dans le cas le plus défavorable, ($N_{2,0} = 0$), l'activité en RaA atteint en 10 minutes 90 % de l'activité du radon, et 99 % en 20 minutes. Pour $N_{2,0} = 0,5\ N_{1,0}$, l'activité en RaA égale 95 % de l'activité radon en 10 minutes d'évolution.

La concentration N_2 du RaA dans l'atmosphère n'étant jamais nulle, il s'en suit que le rapport q_2 (ou facteur de déséquilibre) de l'activité en RaA par unité de volume est très rapidement voisin de l'unité. La mesure expérimentale de q_2 demande donc une grande sensibilité et une bonne précision des appareils de mesure utilisés.

3.2. Etude expérimentale

3.2.1. Choix d'une méthode de mesure

Précision et sensibilité s'obtiennent par accumulation, pendant un temps très court, d'une activité importante au niveau du détecteur.

Comme au paragraphe 1 ci-dessus, les chambres d'ionisation à circulation et les ballons scintillants sont à proscrire. La méthode retenue est celle de la chambre à désintégration de J. FONTAN [22] avec une mesure simultanée des membranes d'entrée et de sortie. La méthode est relative.

3.2.2. Principe et fonctionnement (figure 4.5.)

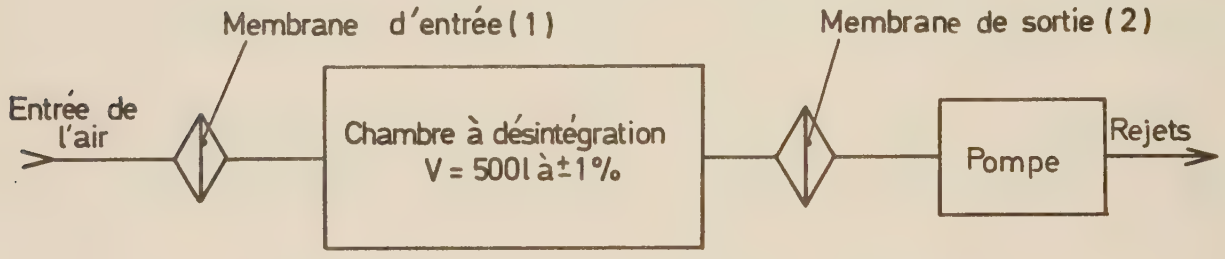


Figure 4.5. Schéma de principe de l'installation de mesure du déséquilibre q_2 entre radon et RaA.

L'air est prélevé à travers une première membrane. Le radon n'est pas retenu. Débarassé de ses descendants, il entre dans la chambre à désintégration. Les descendants, formés pendant le temps de séjour du radon dans la chambre, sont recueillis sur la membrane placée en sortie. Le Ra^A sur chaque membrane est isolé par spectrométrie ; sur la membrane de sortie le RaA est directement proportionnel à la concentration en radon C_1 de l'atmosphère.

3.2.3. Calcul du facteur de déséquilibre q_2

Le prélèvement s'effectue pendant 10 minutes avec un débit de 100 $l.mn^{-1}$. Le temps de passage dans la chambre à désintégration (V = 500 l) est de 5 minutes, le temps de mesure de 3 minutes.

Chaque membrane est analysée avec des détecteurs identiques, dans la même géométrie de mesure.

Dans ces conditions les taux de comptage théoriques sont :

membrane d'entrée :

$$\sigma_{2,1}\ (10) = 0{,}271.10^{10}\ q_2\ k_A\ D\ R_d\ R_f$$

$$\sigma_{2,1} = 0{,}583\ q_2\ imp.s^{-1}$$

membrane de sortie:

$$\sigma_{2,2}\ (10) = 0{,}271.10^{10}\ C_1\ k_A\ D\ R_d\ R_f \times 0{,}679$$

$$\sigma_{2,2}\ (10) = \sigma_{2,1}\ (10) \times 0{,}679$$

Le facteur de déséquilibre q_2 a pour valeur théorique :

$$q_2 = \frac{\sigma_{2,1}\ (10) \times 0{,}679}{\sigma_{2,1}\ (10)} = 0{,}679$$

La valeur théorique de q_2 ne dépend que du temps de séjour du radon dans la chambre de désintégration.

La précision de mesure est la somme des erreurs d'étalonnage et de la précision statistique de comptage.

$$\frac{\Delta q_2}{q_2} = \frac{\Delta R_{d_1\alpha}}{R d_1\alpha} + \frac{\Delta R_{d2\alpha}}{R_{d2\alpha}} + \frac{\Delta N}{N}$$

3.2.4. Mesures et résultats

3.2.4.1. Mesures en laboratoire avec un générateur de radon

L'air à analyser est prélevé dans une enceinte étanche de 4 ou 8 m^3 avec possibilité de prélèvement en circuit ouvert ou fermé.

L'air étant très riche en radon, la précision statistique de comptage est très grande $\pm$ 1 % (concentrations de 10^{-7} à 10^{-9} $Ci.m^{-3}$). Il n'est pas nécessaire de connaître avec précision la concentration en radon puisque la méthode est relative, q_2 sera mesuré à $\pm$ 5 %.

Deux types de mesures ont été réalisés :

1 - vérification de la courbe théorique d'évolution du RaA recueilli sur la membrane de sortie en fonction du temps de passage, dans la chambre à désintégration.

Les temps de passage étaient obtenus par variation du débit de prélèvement. Les résultats sont donnés sur la figure 4.6. où sont portés les points expérimentaux de vérification de la courbe théorique.

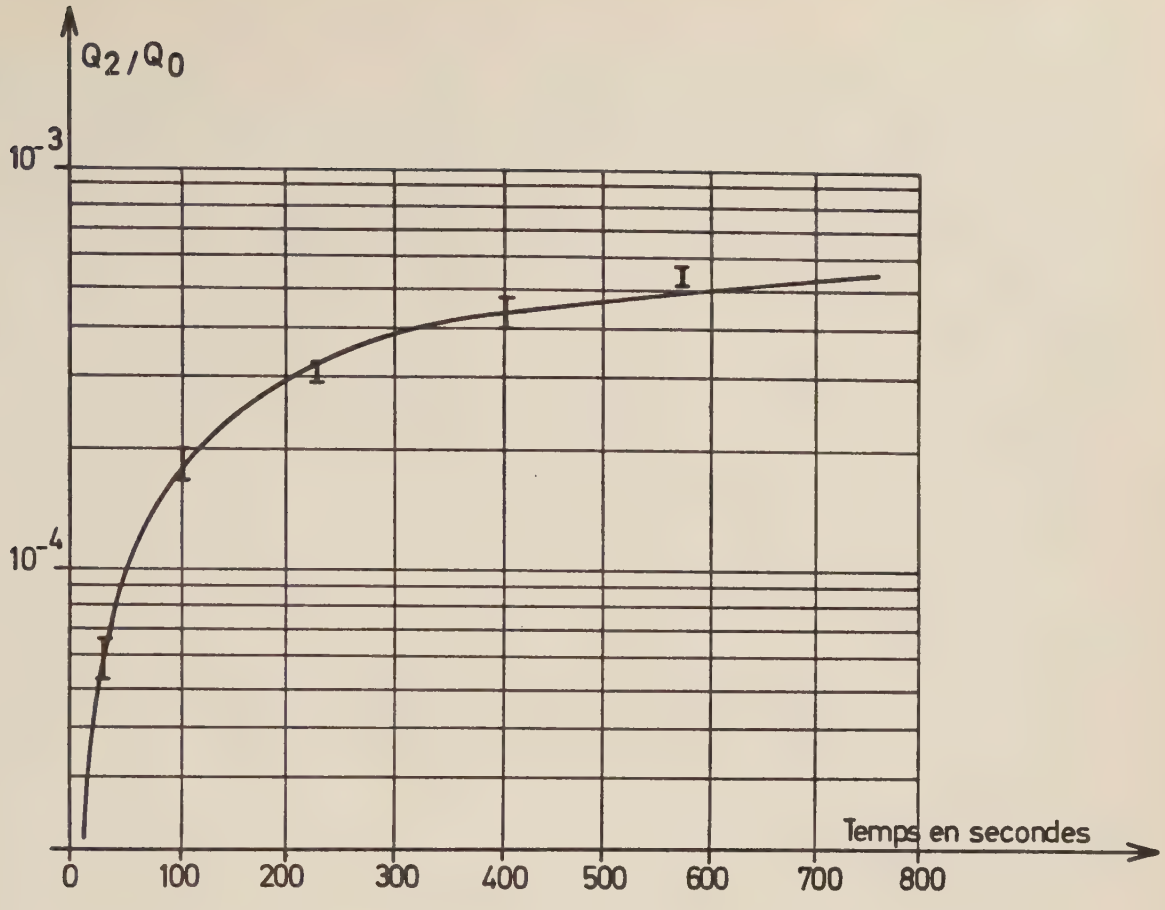


Figure 4.6. Evolution théorique du RaA en fonction du temps de passage du radon dans la chambre à désintégration et vérification expérimentale [22].

2 - Mesure de q_2 en utilisant divers aérosols support en concentrations variées.

Précisons qu'il n'y a pas eu de contrôle de la taille et de la concentration en nombre de particules des aérosols utilisés. Les résultats sont donnés dans le tableau 4.1.

Nature de l'aérosol support du radon et de ses descendants.	valeur de q_2	
	mesurée	normée
Aérosol atmosphérique normal (5 mesures) (CEN-SACLAY)	0,67	0,99 $\pm$0,05
Aérosol atmosphérique normal + brassage de l'air de l'enceinte (10 mesures)	0,68	1,00 $\pm$0,05
Air atmosphérique filtré (10 mesures)	0,67	0,99 $\pm$0,05
Air atmosphérique + fumée de cigarette (5 mesures)	0,665	0,98 $\pm$0,05
Air atmosphérique + fumée d'huile (5 mesures) idem avec brassage (5 mesures)	0,66 0,645	0,97 $\pm$0,05 0,96 $\pm$0,05

Tableau 4.1. Etude de l'équilibre entre radon et Ra A. Influence de l'aérosol support.

Sans brassage, il y a un léger dépôt de l'aérosol atmosphérique. Avec brassage, q_2 est toujours égal à l'unité. Les aérosols de fumée d'huile et de cigarette font apparaître un déséquilibre dû à l'épaisseur des dépôts recueillis. Ce résultat est confirmé par les spectres RaA de la membrane 1. Une correction de dégradé énergétique de 5 % doit être apportée aux mesures alors que les spectres du RaA sur la membrane 2 ont toujours la même forme quel que soit l'aérosol employé.

3.2.4.2. Mesures dans l'atmosphères près du sol

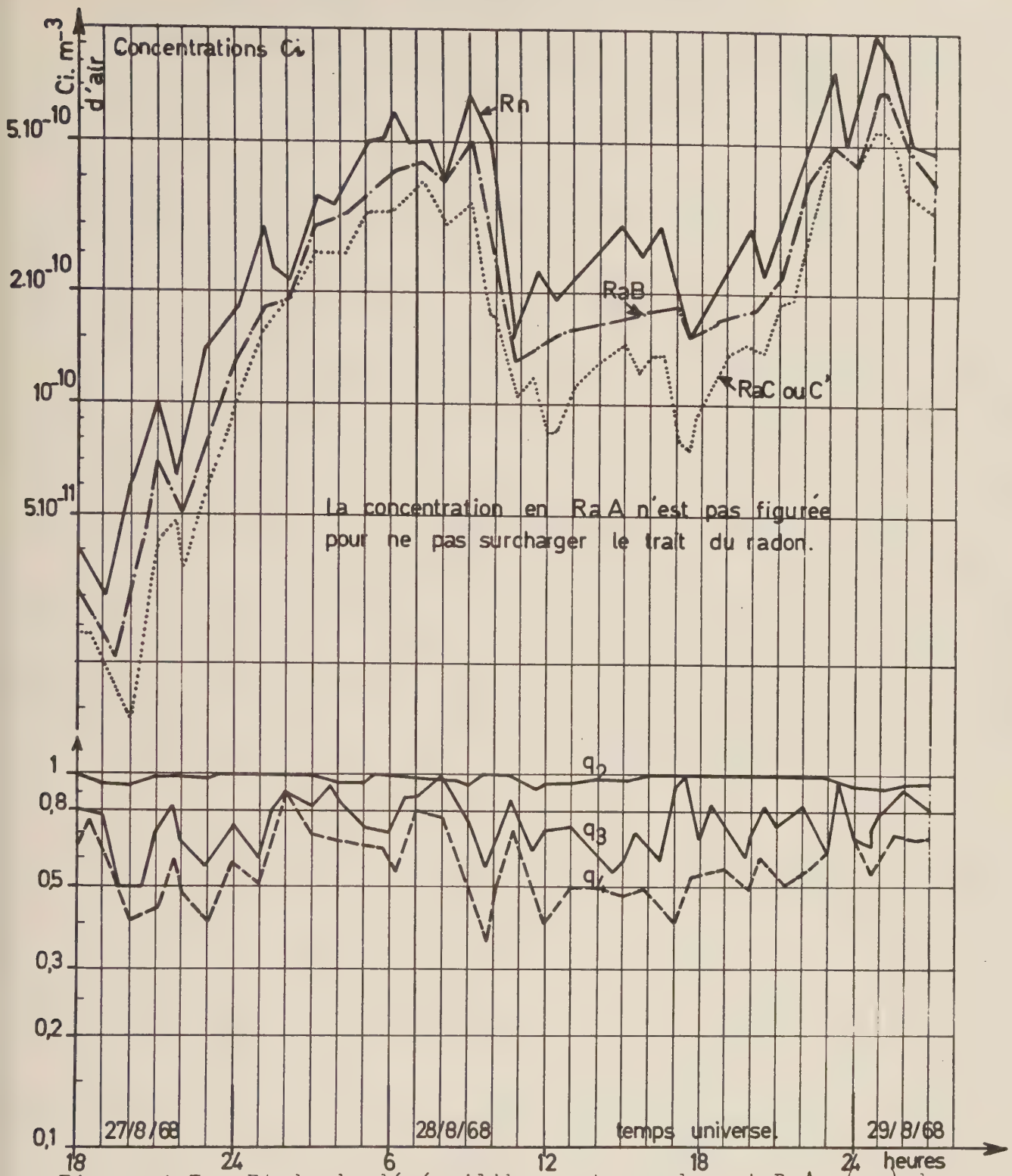


Figure 4.7. Etude du déséquilibre entre radon et RaA (q_2) dans l'atmosphère près du sol (4 mètres).

La figure 4.7. est l'exemple type des mesures effectuées. Les variations de concentration de chaque descendant y sont importantes, ainsi que la valeur des facteurs de déséquilibre q_3 et q_4 relatifs aux RaB et RaC ou C'. Par contre le facteur q_2 est pratiquement constant et ne descend jamais en dessous de 0,92 $\pm$ 0,09

L'évolution de q_2 a été étudiée plusieurs fois au cours des années 1968 et 1969. La valeur de q_2 la plus faible a été obtenue le 8 février 1969

$$q_2 = 0,90 \pm 0,09$$

La figure 4.7. montre également que les valeurs les plus faibles de q_2 ne sont pas obtenues lorsque les concentrations en radon sont élevées. L'accroissement de la concentration en radon s'accompagne d'un accroissement de la précision statistique de mesure et la valeur moyenne de q_2 augmente proportionnellement.

Examinons le tableau 4.2. ci-dessous. Nous donnons la fréquence de mesure d'une valeur de q_2 pour deux types d'évolution de la concentration en radon. Chaque mesure correspond à des jours différents.

concentration en radon constante dans l'atmosphère		la concentration en radon dans l'atmosphère est en pleine croissance	
Valeur de q_2	fréquence de la mesure	Valeur de q_2	fréquence de la mesure
0,91 ± 0,091	1	0,91 ± 0,09	1
0,94 ± 0,094	6	0,94 ± 0,094	3
0,95 ± 0,095	4	0,95 ± 0,095	2
0,97 ± 0,097	2	0,97 ± 0,097	3
0,98 ± 0,098	2	0,98 ± 0,098	5
0,99 ± 0,099	3	0,99 ± 0,099	2
1,03 ± 0,103	1	1,01 ± 0,101	2
1,05 ± 0,105	1	1,03 ± 0,103	2
Valeur moyenne 0,96 ± 0,096		Valeur moyenne 0,978 ± 0,098	

Tableau 4.2. Incidence de l'évolution du radon sur le facteur de déséquilibre q_2.

La dispersion des mesures est moins importante dans le cas des concentrations élevées. La valeur moyenne est plus forte. Il faut donc conclure que le déséquilibre entre le radon et le RaA est peu important. Il se chiffre par quelques % seulement. L'imprécision sur nos étalonnages est suffisante pour rendre toute interprétation très difficile. Elle peut cependant être améliorée.

4 - CONCLUSION

Notre étude de l'état d'équilibre entre le radon et le RaA nous a conduits à négliger la mesure du gaz radon, donc à simplifier l'appareil.

Le facteur de déséquilibre q_2 n'ayant jamais été inférieur à 0,9, l'erreur que nous commettrons sur les facteurs de déséquilibre q_3 et q_4 relatifs au RaA et au RaC ou C' sera toujours inférieure à 10 %.

Nous pensons que des études de ce genre devraient être renouvellées. Les possibilités de spectrométrie α, offertes par les détecteurs à semi-conducteur, devraient conduire à une meilleure précision dans la mesure des concentrations en radon, en utilisant le descendant RaA plutôt que le radon lui-même. En cas de déséquilibre entre radon et RaA, les facteurs q_3 et q_4, obtenus à partir de q_2, sont surestimés, ce qui constitue une sécurité de mesure.

CHAPITRE 5

VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS L'ATMOSPHERE AU NIVEAU DU SOL

I - INTRODUCTION

De nombreux auteurs ont mesuré les variations de la concentration des descendants du radon dans l'air [15 - 16 - 17 - 18 - 19]. Ces mesures sont incomplètes car elles ne sont pas continues. Les mesures continues de J. FONTAN [20 - 21] présentent un caractère nouveau car le déséquilibre entre le radon et ses descendant est connu à tout instant. Un autre pas restait à faire : la mesure en continu de la concentration et du déséquilibre de chaque descendant. C'est ce que permet notre appareil. A ces mesures nous avons relié les paramètres météorologiques.

II - MESURE DE LA CONCENTRATION DE CHAQUE DESCENDANT - DESEQUILIBRE

2.1. Lieu de prélèvement

Les prélèvements ont lieu sur le plateau argileux de Saclay. Le point de prélèvement est situé environ au milieu d'un bâtiment de trois étages, de 100 mètres de longueur, à 0,50 m de la paroi verticale et à 4,50 mètres au-dessus du sol (niveau du 1er étage).

Les paramètres météorologiques sont enregistrés à la station du CEN-SACLAY, distante d'une centaine de mètres du point de mesure, (latitude 48° 43' 13" N - longitude 02° 09' 07" E - altitude 155 m).

2.2. Contrôle des mesures

L'appareil servant aux mesures est doublé par un appareil de contrôle à filtre fixe du type Ariel [55]. Cet ensemble se compose d'une tête de prélèvement sur filtre fixe, d'une pompe et

'une sonde de comptage à scintillation avec électronique et enregistreurs associés. Le prélèvement s'effectue sur papier filtre rose (surface réelle du prélèvement 95 cm^2).

Cet appareil est étalonné et donne le taux de comptage α dû à la somme des descendants (RaA + RaC').

$$1 \text{ impulsion.s}^{-1} = 10^{-11} \text{ Ci.m}^{-3} \quad (RaA + RaC')$$

Remarque : Les mesures ne tiennent pas compte des pertes de comptage dues à la pénétration de l'aérosol dans le filtre rose (correction d'autoabsorption).

2.3. Paramètres de prélèvement

Les deux appareils prélèvent l'air au même point. Les tuyaux de raccordement ont 3,5 m de longueur et 30 et 44 mm de diamètre intérieur.

- débit de prélèvement
  - . filtre fixe : 8,6 $m^3.h^{-1}$
  - . appareil séquentiel : 6 $m^3.h^{-1}$

- temps de prélèvement
  - . filtre fixe : prélèvement continu
  - . appareil séquentiel : 10 minutes.

- surface réelle d'échantillonnage sur le filtre et la membrane
  - . filtre fixe : 95 cm^2
  - . appareil séquentiel : 8 cm^2

2.4. Calcul des concentrations et des facteurs de déséquilibre

Précision des mesures

Le calcul théorique des taux de comptage s'obtient à partir des relations A_{15} du formulaire de l'annexe 2. Le rendement

de filtration R_f est de 100 % et les rendements de détection sont

RaA, $R_{d\alpha} = 40 \pm 3$ % RaB, $R_{d\beta} = 38 \pm 5$ % RaC, $R_{d\beta} = 50 \pm 5$ %

Le temps de mesure $\theta = 3$ minutes impose une correction du RaA de 1,47 (figure 3.6. page 57). Comme $q_2 = 1 \pm^{0}_{q_1}$, si la concentration en radon C_1 est de 10^{-10} $Ci.m^{-3}$ nous avons

$$\mathcal{F}_2 (10) = 72 \text{ impulsions}$$

$$\mathcal{F}_3 (10) = 6 + 234\, C_3 \text{ impulsions} \qquad q_3 = \frac{C_3}{C_2}$$

$$\mathcal{F}_4 (10) = 40\, C_3 + 226\, C_4 \text{ impulsions} \qquad q_4 = \frac{C_4}{C_2}$$

Précisions de mesure

Elle découle directement de la sensibilité de l'appareil. Pour une probabilité constante de 0,9 nous avons, pour la voie de comptage β, erreurs d'étalonnage comprises :

$C_i = 3.10^{-10}$ $Ci.m^{-3}$ précision $\pm$ 20 %

$C_i = 2.10^{-11}$ $Ci.m^{-3}$ précision $\pm$ 30 %

$C_i = 10^{-11}$ $Ci.m^{-3}$ précision $\pm$ 50 %

La précision sur les facteurs de déséquilibre est la somme des précisions sur chaque concentration. La précision de comptage des voies α RaA et RaC' est bien supérieure et ne dépasse pas $\pm$ 20 % à 10^{-11} $Ci.m^{-3}$.

Pratiquement une mesure reste exploitable lorsqu'elle double le comptage dû au bruit de fond.

3 - CONCENTRATION ET DESEQUILIBRE DANS L'ATMOSPHERE PRES DU SOL DE CHAQUE DESCENDANT SOLIDE DU RADON

Nos mesures de la concentration des descendants du radon dans l'atmosphère près du sol s'échelonnent sur deux années, soit l'équivalent de 6 à 7 mois de mesures continues et analysées. Une fraction de ces mesures est donnée dans les figures 5-1 à 5-8.

En règle générale, nous retrouvons les variations classiques de la concentration du radon et de ses descendants : des variations journalières et des variations saisonnières, avec des concentrations allant de 10^{-11} à quelques 10^{-9} $Ci.m^{-3}$. Les valeurs maximales sont obtenues en avril-mai et en septembre-octobre.

Le renouvellement fréquent de l'échantillon fait apparaître de nombreuses fluctuations rapides que l'on ne retrouve pas sur les filtres fixes ou mobiles dont le déplacement est lent (effet ictométrique).

Enfin la méthode permet de présenter des courbes de l'évolution continue du déséquilibre de chaque descendant.

Les courbes représentent 1200 heures environ de mesure. Elles conduisent à la répartition suivante de l'état d'équilibre.

Equilibre complet de la filiation 4 à 6 % du temps de mesure.

Equilibre partiel (équilibre RaA - RaB) 28 à 29 % du temps de mesure.

Déséquilibre 65 à 68 % du temps de mesure.

Equilibre partiel entre RaB et RaC ou C' : 20 % du temps de déséquilibre.

Les facteurs de déséquilibre, comme les concentrations, présentent des fluctuations rapides. Ces fluctuations sont dues à deux phénomènes bien distincts : l'influence des mouvements de l'atmosphère et l'évolution de la filiation. La période du RaB (19,7 mn) est grande devant celle du RaA (3 mn). RaB évolue donc très lentement et à travers lui les RaC et C'. En atmosphère calme il faut trois heures à la filiation pour atteindre son équilibre de régime. Ce temps est long comparé à la stabilité des paramètres atmosphériques : ceci se traduit par une évolution constante du déséquilibre, ce que confirment nos mesures.

4 - INFLUENCE DES MOUVEMENTS DE L'ATMOSPHERE

A l'influence du dégagement du sol en radon, s'ajoute l'influence de la diffusion atmosphérique. MALAKOV [18], JACOBI [19] ont étudié la répartition verticale du radon sous l'influence de la diffusion DRUILHET, BIROT [56 - 57] effectuent une étude aussi complète que possible de ces phénomènes. Aussi nous limiterons-nous à constater l'influence de la turbulence mécanique et de la convection sans en préciser leurs mécanismes.

En première approximation, la turbulence mécanique est liée aux vents (vitesse et direction) et la convection au gradient vertical de température. Turbulence et convection agissent simultanément. La convection augmente le déséquilibre entre chaque descendant au niveau du sol en favorisant la diffusion du radon vers la haute atmosphère. La turbulence mécanique à tendance à rétablir cet équilibre en favorisant le mélange des masses d'air tout en diminuant la concentration en radon au niveau du sol.

5 - INFLUENCE DE LA RUGOSITE DU SOL - OBSTACLES

La turbulence atmosphérique est également liée à la rugosité du sol et à la présence d'obstacles [3 - 58]. Végétation et obstacles tendent à favoriser le déséquilibre de la filiation par capture des descendants. D'après FACY [59] le pouvoir de capture est inversement proportionnel au carré du diamètre de l'obstacle. Un bâtiment devrait donc présenter un coefficient de capture négligeable.

Nos mesures montrent que le déséquilibre près d'un bâtiment est quasi permanent. Des mesures effectuées à distances de plus en plus grandes par rapport au bâtiment n'ont donné aucun résultat positif, les déséquilibres restant du même ordre de grandeur. Les quelques différences douteuses ont été attribuées de façon certaine à l'influence des paramètres météorologiques locaux.

6 - INFLUENCE DES PARAMETRES METEOROLOGIQUES LOCAUX SUR LA CONCENTRATION ET LE DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON

6.1. Humiditié relative et température

Bien qu'ils présentent des variations de sens inverse, ces deux paramètres sont intimement liés, et dans la plupart des cas, ils s'étudient ensemble.

A un accroissement de température correspond une diminution de l'humidité relative et vice versa. Ce phénomène est accentué les jours de temps clair.

Le matin, les basses couches de l'atmosphère sont froides, les hautes couches plus chaudes. La température au niveau du sol diminue et l'humidité relative augmente. Le gradient vertical de température est inversé ; la concentration en radon augmente par accumulation près du sol (figures 5-1, 5-2).

Dans la journée, le contraire se produit. Le sol chauffé par le soleil rayonne une forte quantité de chaleur et les basses couches de l'atmosphère sont plus chaudes. La convection est très importante et la concentration en radon diminue au niveau du sol.

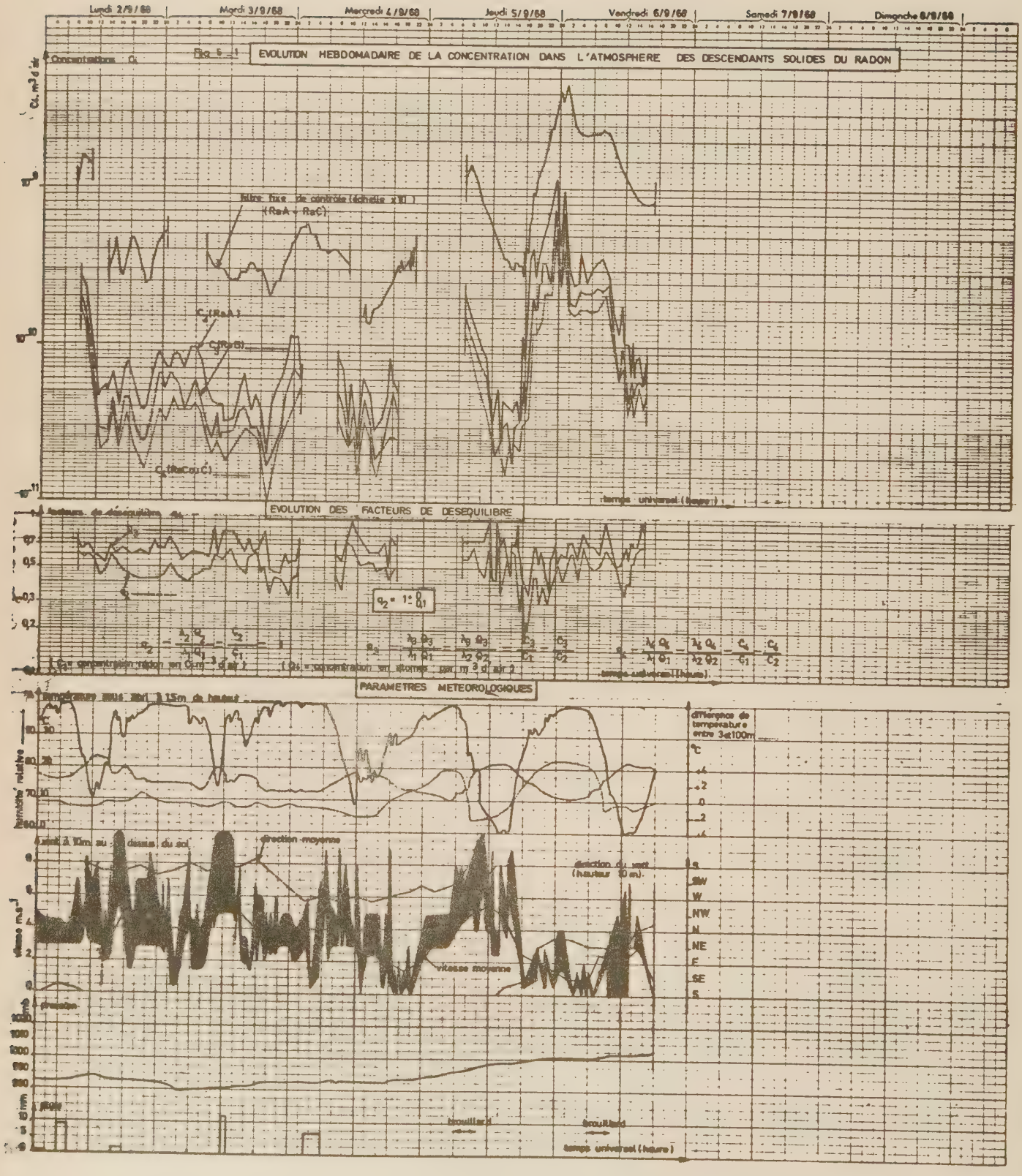
Humidité relative et température sont responsables des fluctuations journalières des concentrations en radon et descendants.

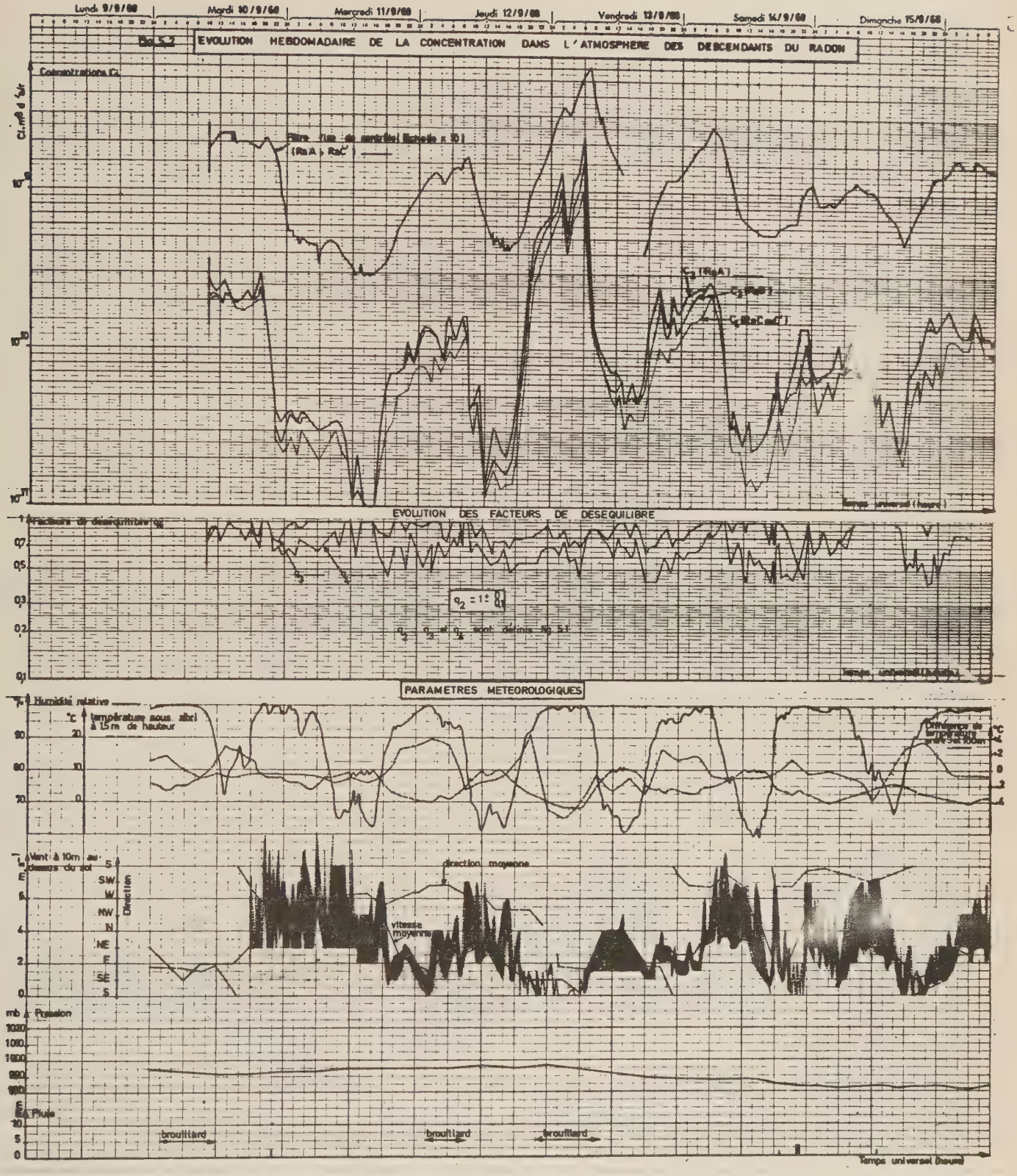
Déséquilibre

Le déséquilibre ne présente pas de fluctuations journalières aussi nettes que les concentrations. Cependant il augmente lorsque la convection est à son maximum et que le radon diffuse vers les hautes couches de l'atmosphère. Nous remarquons qu'il est plus fort pendant les périodes de croissance des concentrations (accumulation en radon près du sol) que pendant les périodes de diminution où il se rapproche de l'unité.

6.2. Action des vents - vitesse - amplitude - direction

Sur les figures 5-1 à 5-8 nous avons porté la vitesse


Lundi 2/9/68
Mardi 3/9/68
Mercredi 4/9/68
Jeudi 5/9/68
Vendredi 6/9/68
Samedi 7/9/68
Dimanche 8/9/68
Fig. 5 - 1
EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
Concentrations Ci
Filtre fixe de contrôle (échelle x 10)
(RaA + RaC')
Ci (RaA)
Ci (RaB)
Ci (RaC + RaC')
temps universel (heure)
EVOLUTION DES FACTEURS DE DESEQUILIBRE
Facteurs de déséquilibre
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
température relative
vent à 10m au dessus du sol
direction moyenne
direction du vent (hauteur 10 m)
vitesse moyenne
pression
pluie
brouillard
temps universel (heure)
différence de température entre 3 et 100m


Lundi 9/9/68
Mardi 10/9/68
Mercredi 11/9/68
Jeudi 12/9/68
Vendredi 13/9/68
Samedi 14/9/68
Dimanche 15/9/68
Fig. 5.2
EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS DU RADON
Concentrations Ci
Ci en pCi d⁻¹ dm³
Fibre Film de particules (facteur x 10)
(RaA ; RaC')
C3 (RaA)
C3 (RaB)
C3 (RaC et C')
Temps universel (heure)
EVOLUTION DES FACTEURS DE DESEQUILIBRE
Facteurs de déséquilibre q2
q2 = 1 ± β
q2, q3 et q4 sont définis Rp 5.1
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
Humidité relative
°C
température sous abri à 1,5 m de hauteur
Différence de température entre 1m et 10m
Vent à 10m au dessus du sol
direction moyenne
vitesse moyenne
Direction
S
SW
W
NW
N
NE
E
SE
S
Pression
mb
Pluie
brouillard
brouillard
brouillard
Temps universel (heure)

moyenne, l'amplitude de la vitesse et la direction moyenne des vents. Le vent brasse l'atmosphère d'autant plus vite que l'amplitude et la valeur moyenne de sa vitesse sont grandes.

Les fluctuations journalières des concentrations sont liées à l'enveloppe des variations lentes de l'amplitude de la vitesse des vents ; elles sont de sens contraire. Les fluctuations rapides de la vitesse des vents sont la cause des variations rapides des concentrations et des facteurs de déséquilibre. Aux amplitudes élevées et constantes correspondent l'équilibre de la filiation ou des valeurs voisines de l'équilibre. Aux périodes d'amplitudes presque nulles correspondent des déséquilibres importants surtout si la vitesse moyenne est faible.

Il est difficile de trouver sur les enregistrements une corrélation des concentrations et des facteurs de déséquilibre avec la direction du vent. Ceci s'explique par la présence du bâtiment qui crée des remous d'air ou des directions privilégiées qui ne sont pas reliées aux mesures locales. Cependant nous pouvons remarquer que dans l'ensemble des figures, les déséquilibres les plus importants sont obtenus pour des vents de directions continentales (figures 5-6 et 5-7). Pour les vents d'ouest et sud-ouest, les concentrations et déséquilibres sont dans l'ensemble moins élevés (figures 5-3, 5-4 et 5-5).

6.3. Autres paramètres météorologiques

6.3.1. Pression

Il ne nous est pas possible de distinguer une influence certaine de la pression. Vents, températures et humidité relative jouent un rôle trop important et estompent toute autre influence possible. ISRAEL [60] attribue des variations des concentrations en radon à la pression atmosphérique.

6.3.2. Pluie

Chaque période de pluie correspond à des amplitudes assez fortes et constantes de la vitesse du vent. Les interprétations sont donc délicates, mais nous constatons que les précipitations n'entraînent pas de variations franches des concentrations

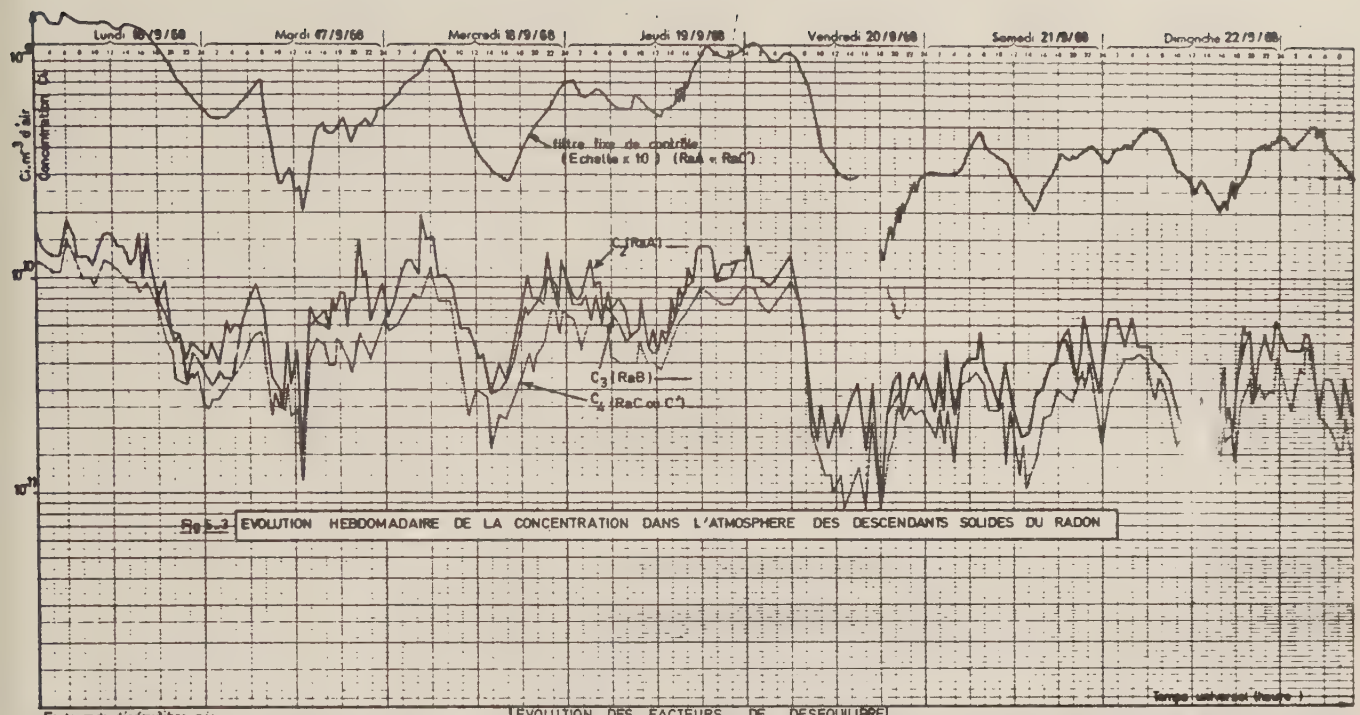
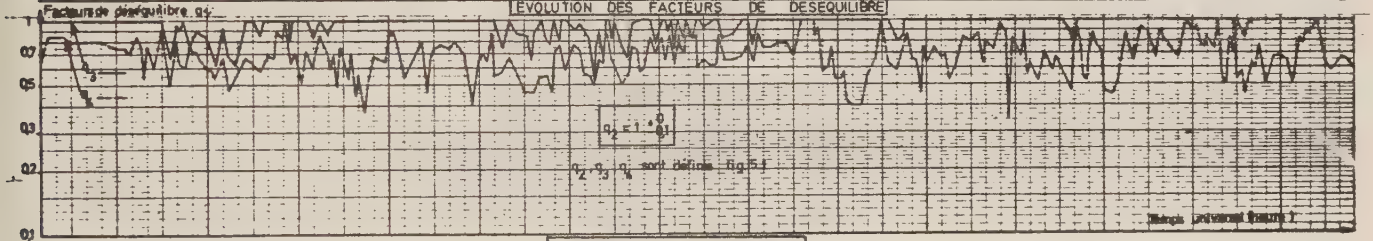
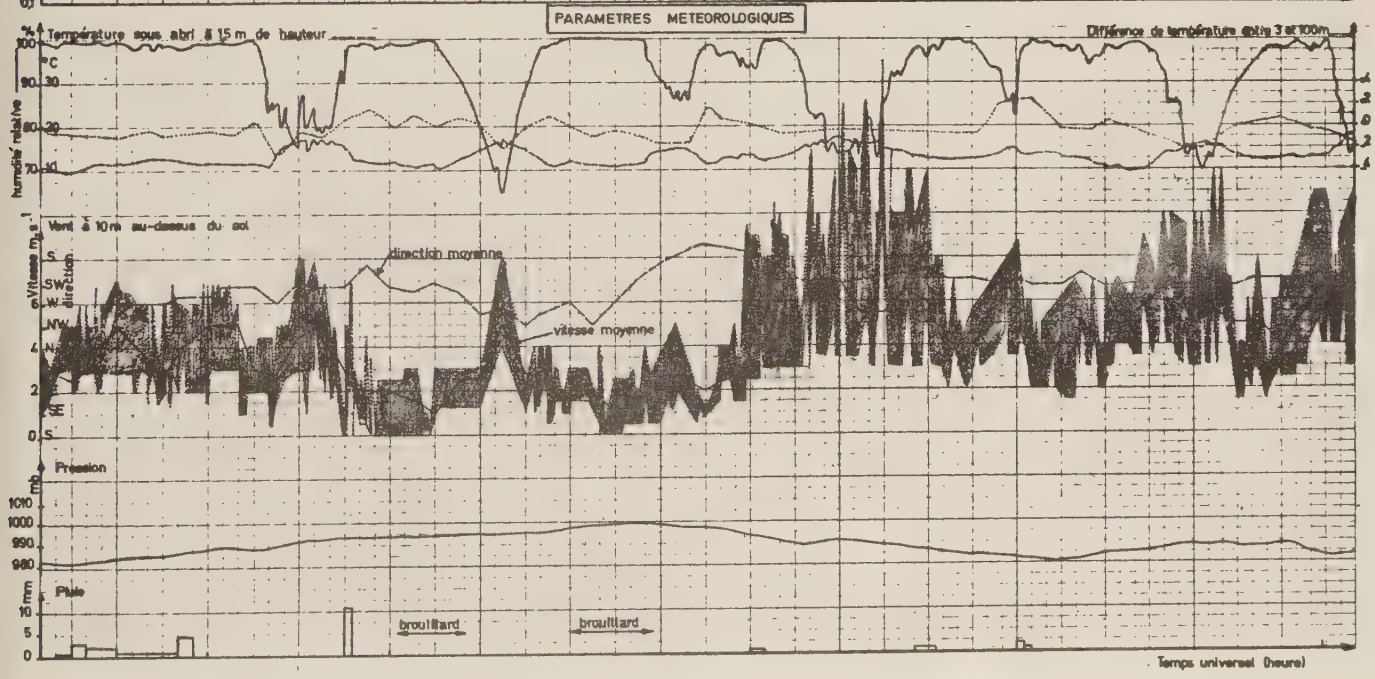
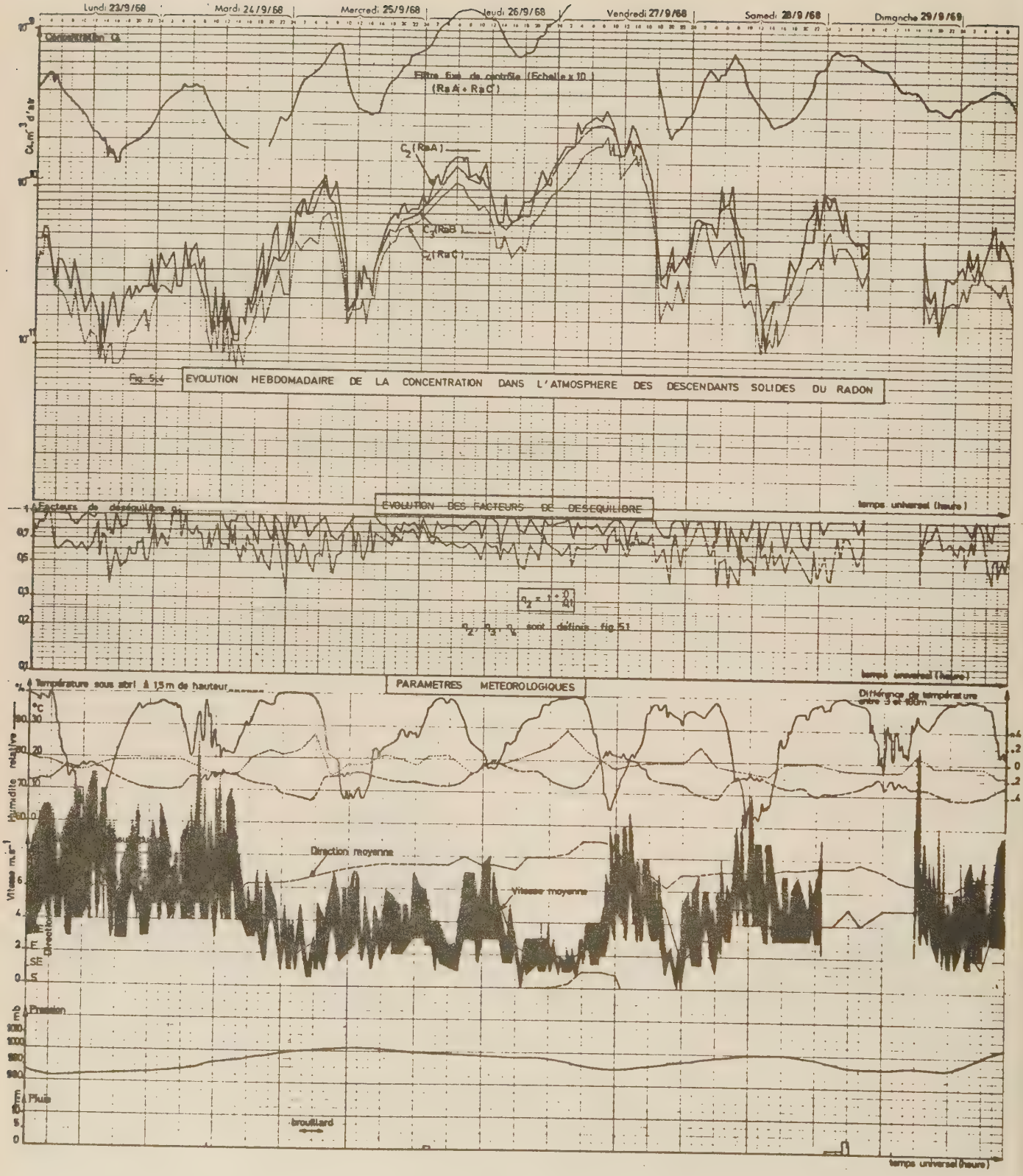
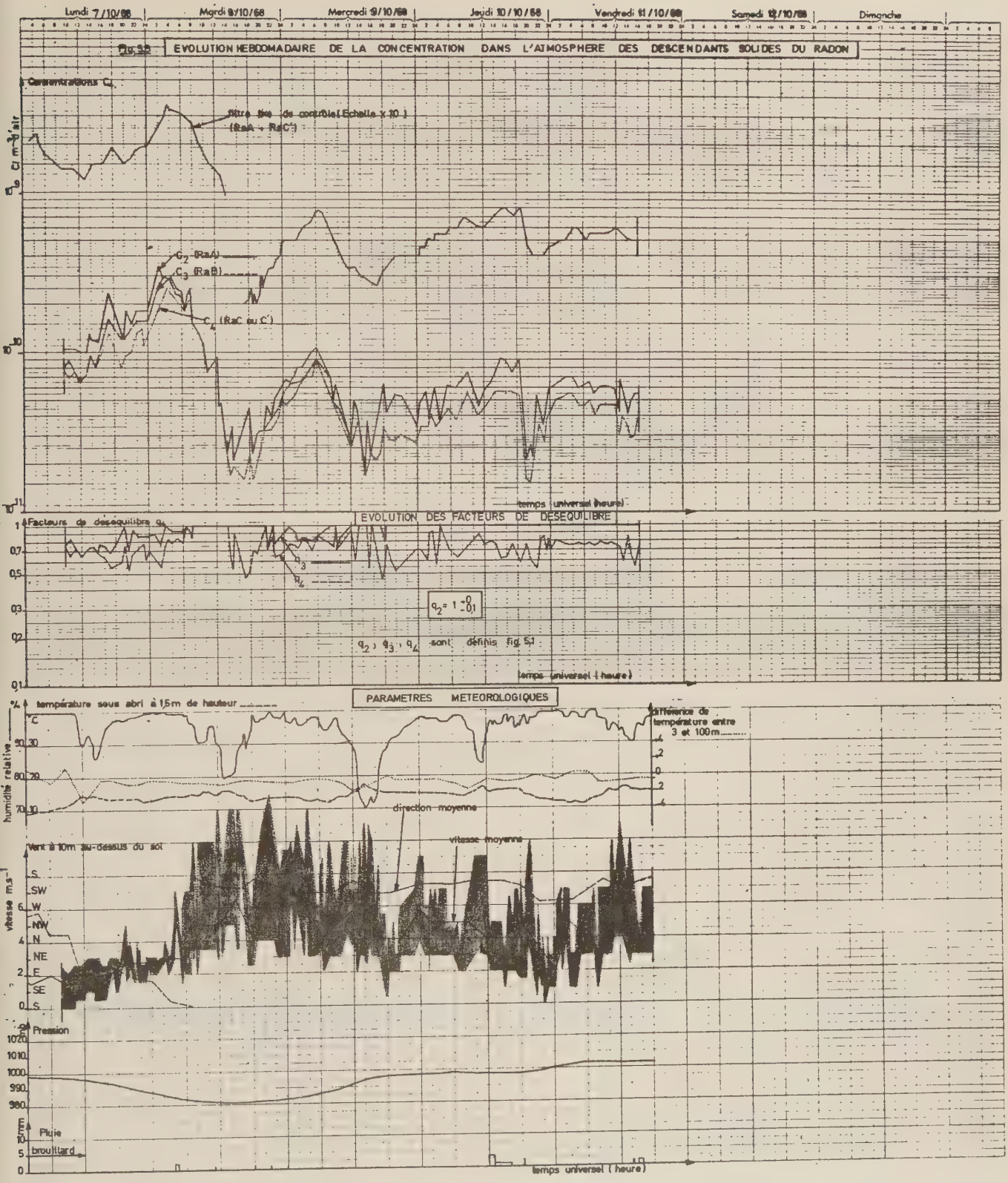


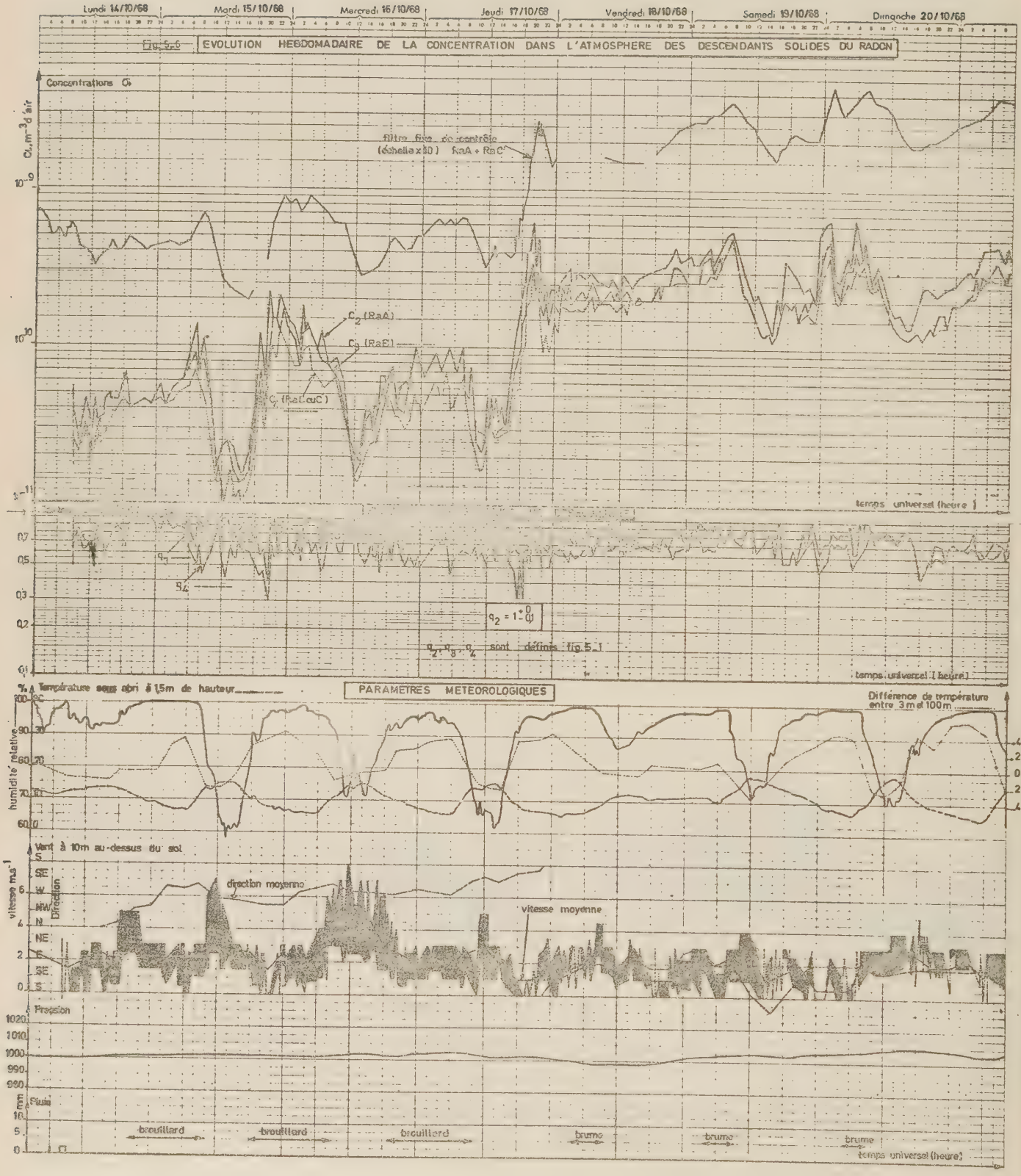
Fig 5-3 EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON

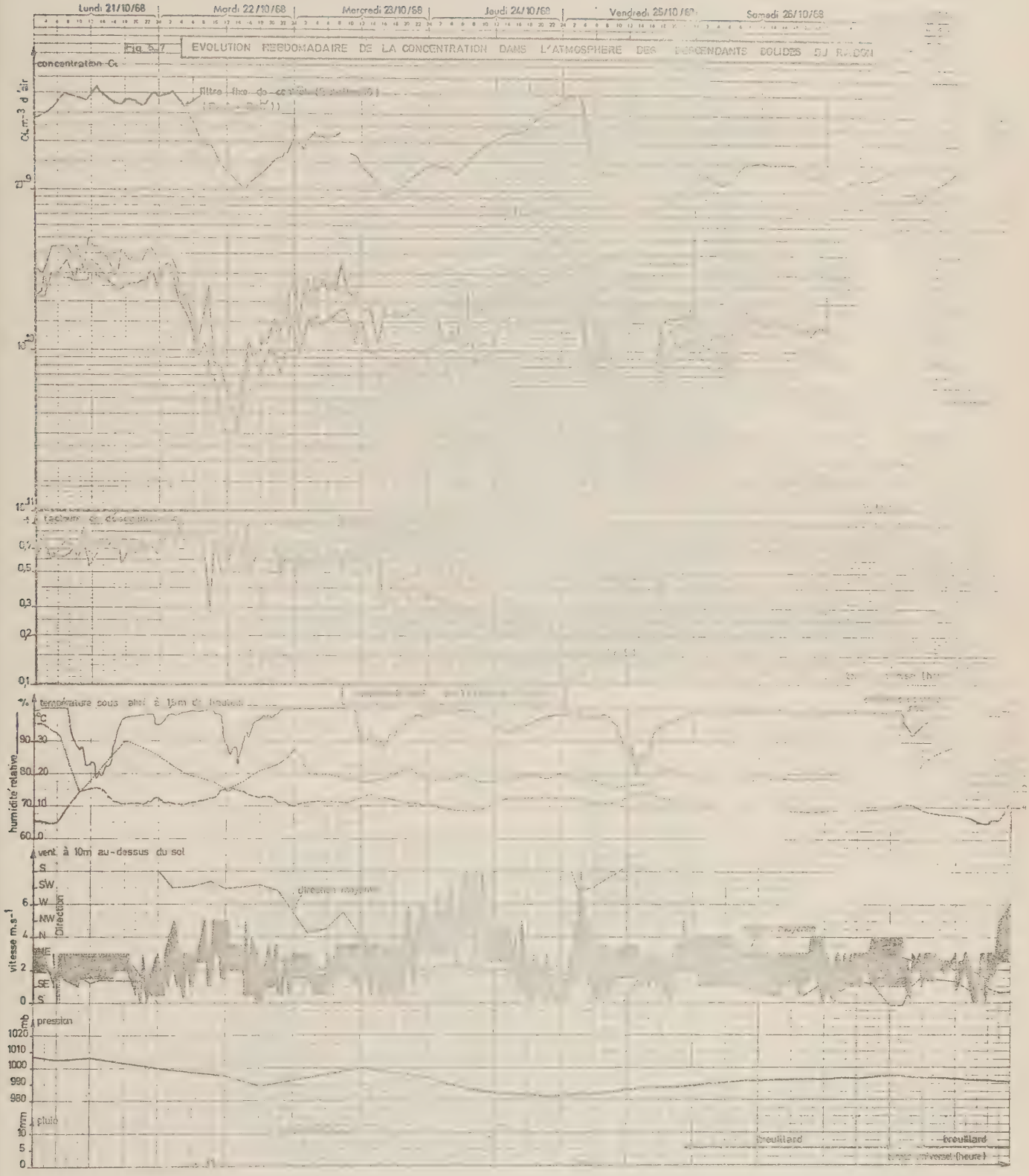





Lundi 23/9/68
Mardi 24/9/68
Mercredi 25/9/68
Jeudi 26/9/68
Vendredi 27/9/68
Samedi 28/9/68
Dimanche 29/9/68
Concentration Cz
Filtre fixe de contrôle (Echelle x 10)
(RaA + RaC')
C2 (RaA)
C2 (RaB)
C2 (RaC')
C.u.m-3 d'air
Fig. 5.4 EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
Facteurs de déséquilibre ηi
EVOLUTION DES FACTEURS DE DESEQUILIBRE
temps universel (heure)
η2 = 1 + ∂/∂t
η2, η3, η4 sont définis fig 5.1
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
Température sous abri à 1,5 m de hauteur
Différence de température entre 3 et 60m
Humidité relative
Vitesse m.s-1
Direction moyenne
Vitesse moyenne
Direction
Pression
Pluie
brouillard
temps universel (heure)


Lundi 7/10/68
Mardi 8/10/68
Mercredi 9/10/68
Jeudi 10/10/68
Vendredi 11/10/68
Samedi 12/10/68
Dimanche
Fig. 32 EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
Concentrations C_i
filtre fixe (de contrôle) (Echelle x 10)
(RaA + RaC')
C_2 (RaA)
C_3 (RaB)
C_4 (RaC ou C')
temps (universel heure)
EVOLUTION DES FACTEURS DE DESEQUILIBRE
Facteurs de déséquilibre q_i
q_3
q_4
$q_2 = 1 - \frac{0}{0,1}$
q_2, q_3, q_4 sont définis fig. 5.1
temps (universel (heure)
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
température sous abri à 1,5m de hauteur
humidité relative
différence de température entre 3 et 100m
direction moyenne
vitesse moyenne
Vent à 10m au-dessus du sol
vitesse m.s⁻¹
S
SW
W
NW
N
NE
E
SE
S
Pression
Pluie
brouillard
temps universel (heure)


Lundi 14/10/68
Mardi 15/10/68
Mercredi 16/10/68
Jeudi 17/10/68
Vendredi 18/10/68
Samedi 19/10/68
Dimanche 20/10/68
Fig. 5.6 EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
Concentrations Ci
Ci, m⁻³ d'air
filtre fixe de contrôle (échelle x 10) RaA + RaC'
C2 (RaA)
C3 (RaB)
C4 (RaC ou C')
temps universel (heure)
q1
q4
q2 = 1 - q0
q2, q3, q4 sont définis fig. 5.1
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
Température sous abri à 1,5m de hauteur
humidité relative
Différence de température entre 3m et 100m
Vent à 10m au-dessus du sol
vitesse m.s⁻¹
direction moyenne
vitesse moyenne
Direction
Pression
Pluie
mm
brouillard
brouillard
brouillard
brume
brume
brume
temps universel (heure)


Lundi 21/10/68
Mardi 22/10/68
Mercredi 23/10/68
Jeudi 24/10/68
Vendredi 25/10/68
Samedi 26/10/68
Fig. 5-7 EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
concentration Cc
Cc en m-3 d'air
filtre fixe de contrôle
hauteur de dissolution
humidité relative %
température sous abri à 1,5m de hauteur
vent à 10m au-dessus du sol
direction moyenne
vitesse m.s-1
Direction
S
SW
W
NW
N
NE
SE
S
pression
mb
pluie
mm
brouillard
brouillard
temps universel (heure)

et des facteurs de déséquilibre (figures 5.1 et 5.3.). Le radon atmosphérique, même si le sol est imbibé d'eau, joue un rôle régulateur dû à sa période radioactive. Ces résultats sont identiques à ceux d'autres auteurs [22 - 56] . Certains montrent que la radioactivité de la pluie se trouve surtout fixée au niveau du nuage [37].

Le brouillard présente également un effet peu marqué sur les concentrations et le déséquilibre (figures 5.6 et 5.7). Le 26 octobre vers 6 heures le brouillard se transforme en une pluie fine et lente avec vent faible et constant. Il y a alors diminution très nette du déséquilibre. Nous ne pouvons pas conclure, cette observation de pluie fine étant la seule que nous ayons faite.

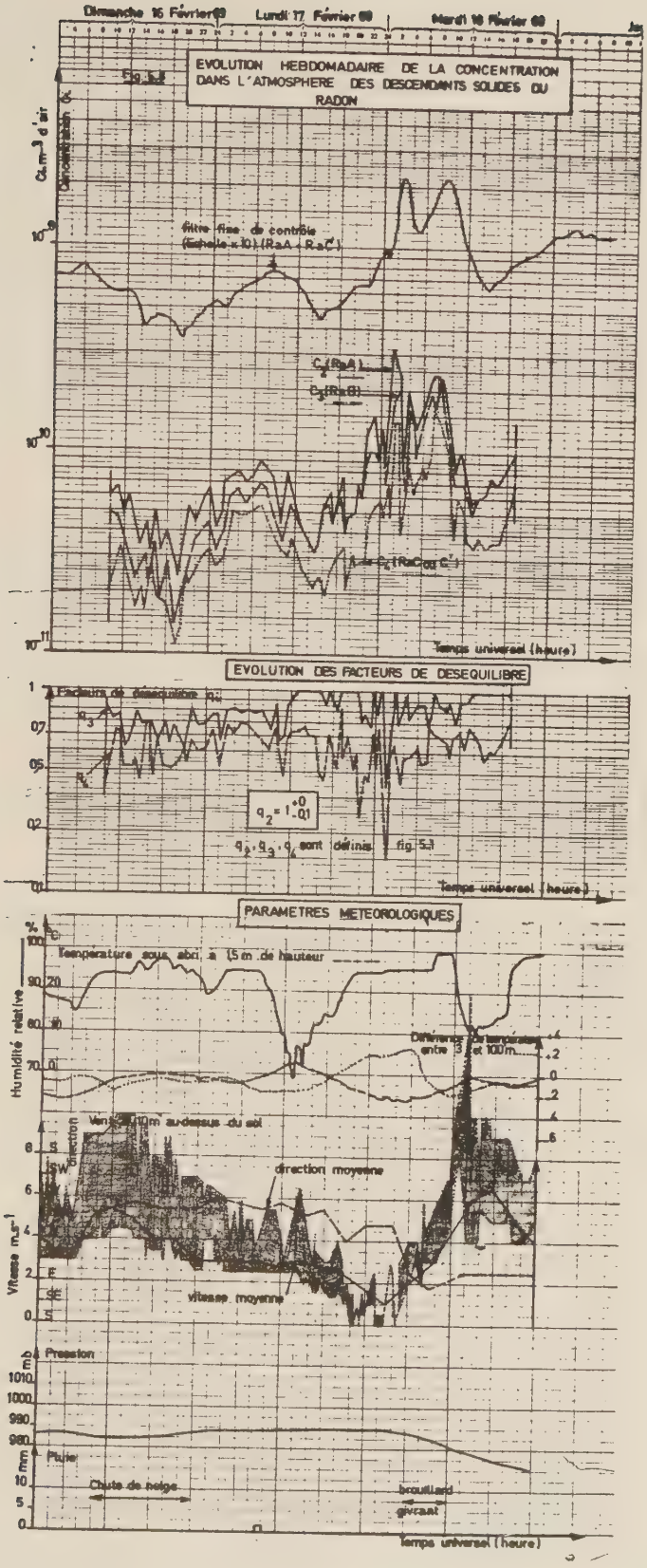
6.3.3. Neige et gel

C'est l'objet de la figure 5.8. La température est inférieure à 0 °C et le sol est gelé. De faibles chutes de neige ont lieu le matin et l'après-midi. A partir de 18 heures, la chute est plus abondante et conduit à une couche de neige de 5 à 6 cm.

Dès le début de la chute de neige, les concentrations en radon et descendants diminuent. Par contre, l'hygrométrie augmente ; la vitesse et l'amplitude du vent sont élevées. Ces résultats sont contraires à ceux que nous avons énoncés plus haut. Cependant ils sont confirmés par le filtre fixe de contrôle et la station météorologique du C.E.N-SACLAY.

Le facteur de déséquilibre q_3 (RaB/Rn) décroît pendant toute la durée de la chute de neige tandis que q_4 (RaC ou C'/Rn) croît lentement mais suit fidèlement les fluctuations de l'amplitude des vents.

Nous concluons que la neige entraîne un lessivage partiel de l'atmosphère. A partir du lundi 17 février à 6 h 00, les variations des concentrations et des facteurs de déséquilibres redeviennent conformes à nos explications des paragraphes antérieurs.


Dimanche 16 Février 69
Lundi 17 Février 69
Mardi 18 Février 69
EVOLUTION HEBDOMADAIRE DE LA CONCENTRATION DANS L'ATMOSPHERE DES DESCENDANTS SOLIDES DU RADON
Fig. 5.2
Concentration C en m-3 d'air
filtre fixe de contrôle (Echelle x 10) (RaA + RaC')
C2 (RaA)
C3 (RaB)
C4 (RaC ou C')
Temps universel (heure)
EVOLUTION DES FACTEURS DE DESEQUILIBRE
Facteurs de déséquilibre q
q2 = 1.01
q2, q3, q4 sont définis fig. 5.1
Temps universel (heure)
PARAMETRES METEOROLOGIQUES
Température sous abri à 1,5 m de hauteur
Humidité relative
Différence de température entre 1,5 et 100 m
Vent à 10 m au-dessus du sol
direction moyenne
vitesse moyenne
Vitesse m.s-1
Pression
Pluie
Chute de neige
brouillard givrant
Temps universel (heure)

Dans la nuit du 17 au 18 février bien que le sol soit gelé (-6 à -7 °C), des brouillards givrants et un régime d'inversion avec vent pratiquement nul entrainent une augmentation des concentrations en radon d'un facteur 10. Le déséquilibre en descendants solides est important (q_3 = 0,35 et q_4 = 0,15 pour la valeur la plus basse).

7 - DISCUSSION DE NOS MESURES

Nous avons vu page 68 que le temps d'équilibre de la filiation représente seulement 5 % du temps de mesure, valeur faible comparée aux résultats de certains auteurs [19 - 22 - 56]. Nous allons discuter des causes de cet écart.

Elaboration des courbes de concentration

Les courbes de concentration de chaque descendant apparaissent sur l'enregistreur comme une succession de points toutes les 10 minutes (figure 5.9)

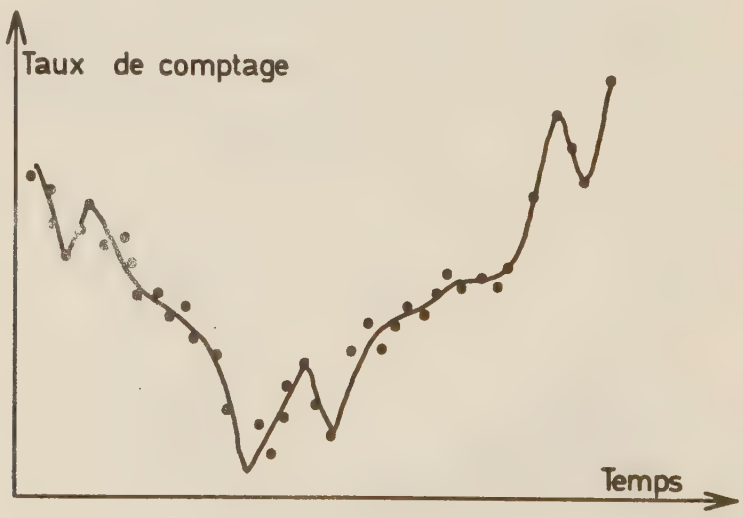


Figure 5.9. Exemple de courbe obtenue sur l'enregistreur.

A ces points, nous substituons une courbe continue qui définit une valeur de concentration que nous pouvons considérer comme une valeur "moyenne". A partir du tracé continu,nous calculons les

concentrations réelles et les facteurs de déséquilibre, ce qui conduit aux courbes d'évolution définitives des figures 5.1 à 5.8 par exemple. Ces courbes sont entachées d'une première erreur.

Comme nous travaillons à probabilité constante de 0,9 , pour le tracé du trait continu nous avons pris comme règle générale d'admettre que 3 mesures représentent une fluctuation certaine de la concentration, ce qui explique le caractère haché de nos courbes. Mais nous avons vu que ces variations étaient assez bien corrélées avec les fluctuations de la vitesse et de l'amplitude du vent. Notre hypothèse pour le tracé continu de la courbe est donc vérifiée expérimentalement.

Précision des mesures

Aux valeurs moyennes ci-dessus il faut ajouter la précision de mesure donnée page 78. Raisonnons sur un exemple (figure 5.2). Les concentrations sont en $Ci.m^{-3}$.

Le 12.9.1968 à 12 h 00 nous notons :

$C_2 = 1,5.10^{-11}$ $C_3 = 1,38.10^{-11}$ $C_4 = 1,15.10^{-11}$

$q_2 = 1$ $q_3 = 0,92$ $q_4 = 0,77$

Ajoutons la précision de mesure, il vient :

$C_2 = (1,5 \pm 0,45)\ 10^{-11}$ $C_3 = (1,38 \pm 0,7)10^{-11}$ $C_4 = (1,15 \pm 0,35)10^{-11}$

$q_2 = 1 - 0,1$ $q_3 = 0,92 \pm 0,7$ $q_4 = 0,77 \pm 0,23$

Il y a doute sur le déséquilibre bien que la probabilité d'obtenir cette valeur soit de 0,9.

Le 12.9.1968 à 20 h 00, compte tenu de la précision, nous avons :

$C_2 = (2,5 \pm 0,3)10^{-10}$ $C_3 = (2,0 \pm 0,5)10^{-10}$ $C_4 = (1,3 \pm 0,2)10^{-10}$

$q_2 = 1 - 0,1$ $\quad q_3 = 0,80 \pm 0,30$ $\quad q_4 = 0,52 \pm 0,11$

Le déséquilibre en RaC ou C' subsiste avec certitude.

Le 13.9.1968 à 6 h 00 nous avons

$C_2 = (2,2 \pm 0,11)\ 10^{-9}$ $\quad C_3 = (1,5 \pm 0,22)\ 10^{-9}$ $\quad C_4 = (1 \pm 0,05)\ 10^{-9}$

$q_2 = 1 - 0,1$ $\quad q_3 = 0,7 \pm 0,14$ $\quad q_4 = 0,46 \pm 0,09$

Le déséquilibre est bien réel.

L'évolution continue des valeurs moyennes et de la précision de q_3 et q_4, en fonction des valeurs des concentrations, est donnée par les figures 5.10 et 5.11 pour la même période d'analyse.

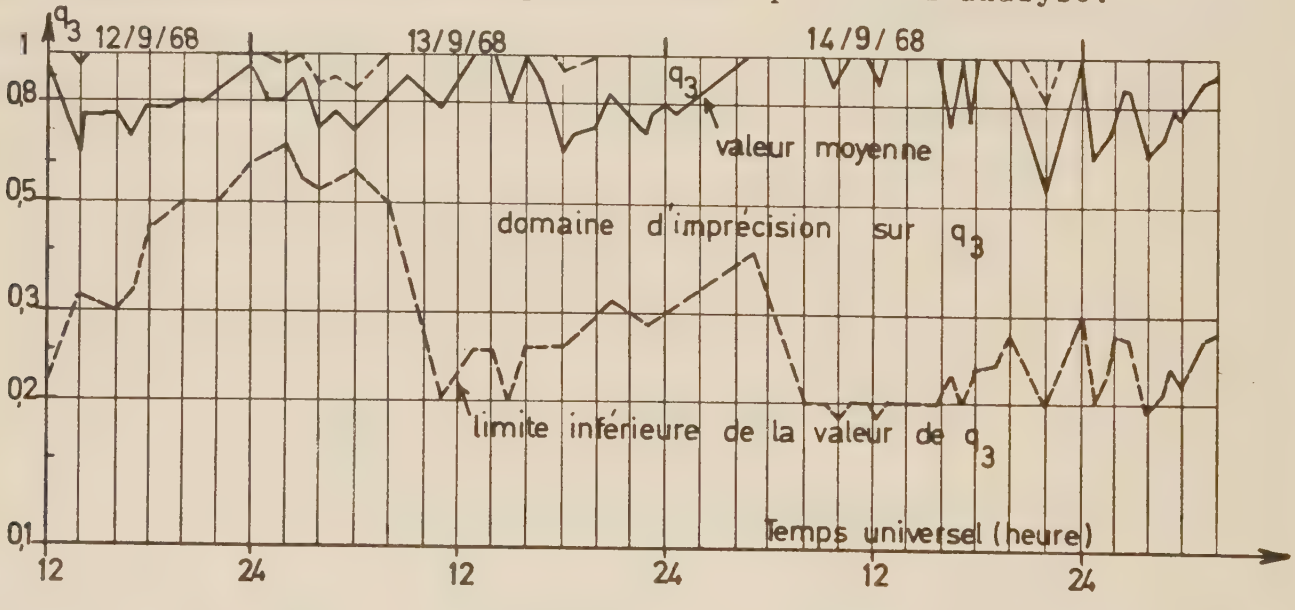


Fig. 5.10. Evolution continue de la précision sur la valeur moyenne de q_3 en fonction de la concentration en radon.

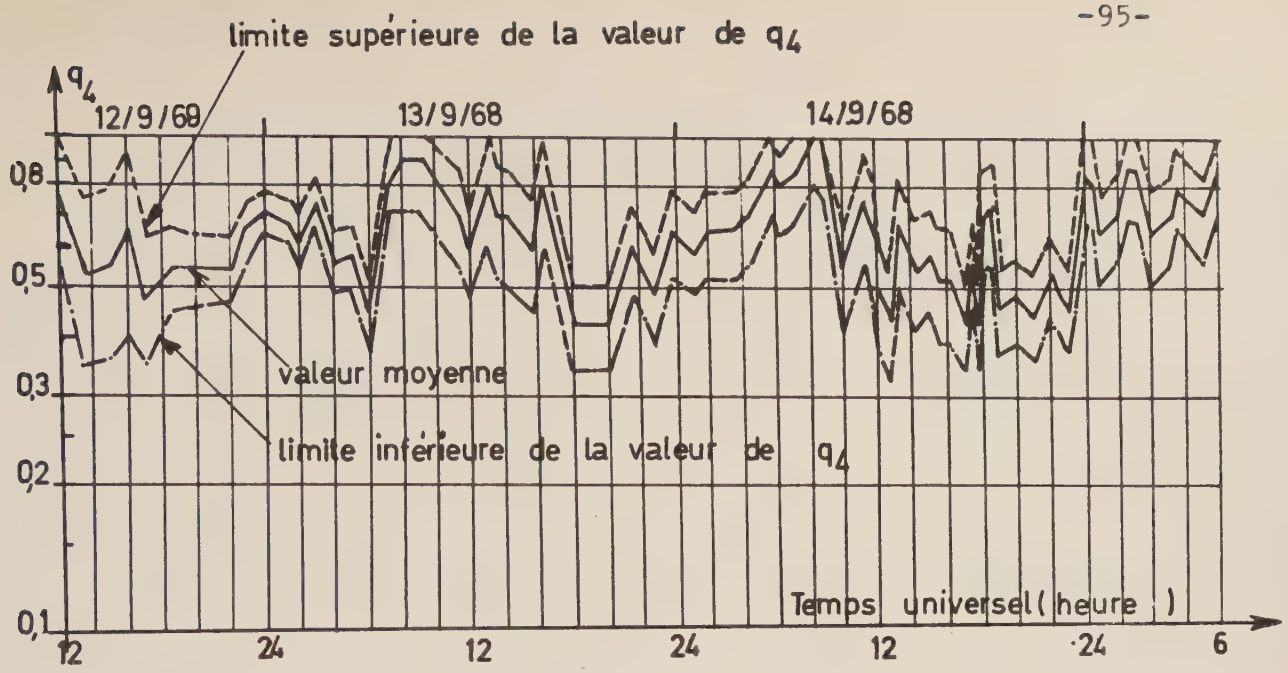


Figure 5.11. Evolution continue de la précision sur la valeur moyenne de q_4 en fonction de la concentration en radon.

En résumé :

si C_i 10^{-10} Ci.m^{-3} q_3 et $q_4 < 0,8$ le déséquilibre est certain

si $C_i < 10^{-10}$ Ci.m^{-3} q_3 et q_4 0,8 il y a doute.

Dans ces conditions le déséquilibre reste réel pendant 50 à 70 % du temps de mesure ce qui est plus conforme à la réalité.

Autoabsorption dans la membrane

L'autoabsorption de l'aérosol dans la membrane a été étudiée au chapitre 2. Elle entraîne des corrections de pénétration de 10 à 2 % lorsque l'énergie E_0 des α passe de 2 à 10 MeV. La correction en fonction de la valeur du coefficient d'efficacité μ est de 1 à 3 % seulement pour μ compris entre 6 et 10 inclus. L'aérosol atmosphérique ne perturbe pratiquement pas les mesures. Ce fait a été contrôlé expérimentalement tout au long de nos mesures par l'enregistrement de nombreux spectres. Le dégradé énergétique restait identique d'un spectre à l'autre. Précisons que sur 10 minutes de prélèvement le colmatage est nul.

8 - CONCLUSION

Les enregistrements précédents des concentrations et des facteurs de déséquilibre du radon et de ses descendants solides à vie courte montrent que la filiation n'est pas toujours à l'équilibre complet. C'est un résultat important surtout en radioprotection.

pliquée ; les principes d'élaboration de la plupart des appareils de détection de la contamination radioactive artificielle de l'air reposent sur l'état d'équilibre permanent de la filiation au radon.

Exemple : l'enregistreur d'aérosols pour la détection α et β des contaminations repose sur la constance du rapport $\frac{\text{comptage } \alpha}{\text{comptage } \beta}$ de la filiation du radon [61]. Ce rapport n'est constant que pour la saturation du filtre et que lorsque l'équilibre de la filiation du radon est réalisé. En période de déséquilibre il fluctue ; la fluctuation peut être due soit au déséquilibre radon soit à la contamination.

Nous avons mis en évidence des fluctuations rapides des concentrations et montré qu'il existe une corrélation entre ces variations et les fluctuations rapides de l'amplitude de la vitesse du vent.

Lorsque les concentrations sont inférieures à 10^{-10} Ci.m^{-3}, les déséquilibres obtenus sont douteux. Ceci est dû à un manque de sensibilité et ne met pas en cause la méthode de mesure. D'ailleurs ce défaut de sensibilité se retrouve dans la plupart des appareils de mesure de l'activité de l'air ; il n'est donc pas spécifique au notre.

Enfin rappelons que nos mesures ont été faites à proximité d'un bâtiment de 4 étages et de 100 mètres de longueur.

CHAPITRE 6

VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS LES ATMOSPHERES CONDITIONNEES

I - INTRODUCTION

Dars le chapitre précédent nous avons mesuré la concentration et le déséquilibre des descendants du radon en atmosphère libre. La diffusion et les paramètres météorologiques y sont les causes profondes de l'évolution de la filiation.

Il en est tout autrement dans les atmosphères que nous désignons par "conditionnées" (air d'une mine d'uranium, hall de pile, cellules d'un laboratoire de haute activité ... etc...) où l'air est filtré et renouvelé à tout instant, à un taux constant, grâce à des systèmes de ventilation puissants. Nous étudierons également l'air d'un local non ventilé et non filtré (laboratoire).

L'évolution de la concentration et du déséquilibre des descendants du radon dans une mine d'uranium a été étudiée par de nombreux auteurs [24 - 25 - 62 - 63 - 64]. Peu d'études sont consacrées aux atmosphères ventilées et filtrées [65 - 66]. Enfin dans les deux cas il n'existe pas de mesures en continu des concentrations et des facteurs de déséquilibre. Avec notre appareil, nous avons pu suivre l'évolution des descendants du radon. Les mesures étant continues, nous avons pu relier à tout instant le déséquilibre correspondant.

2 - VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DE CHAQUE DESCENDANT DU RADON DANS UN LOCAL NON VENTILE ET NON FILTRE

Le local est notre laboratoire. Il est en communication directe avec l'air extérieur par portes et fenêtres. La figure 6.1.

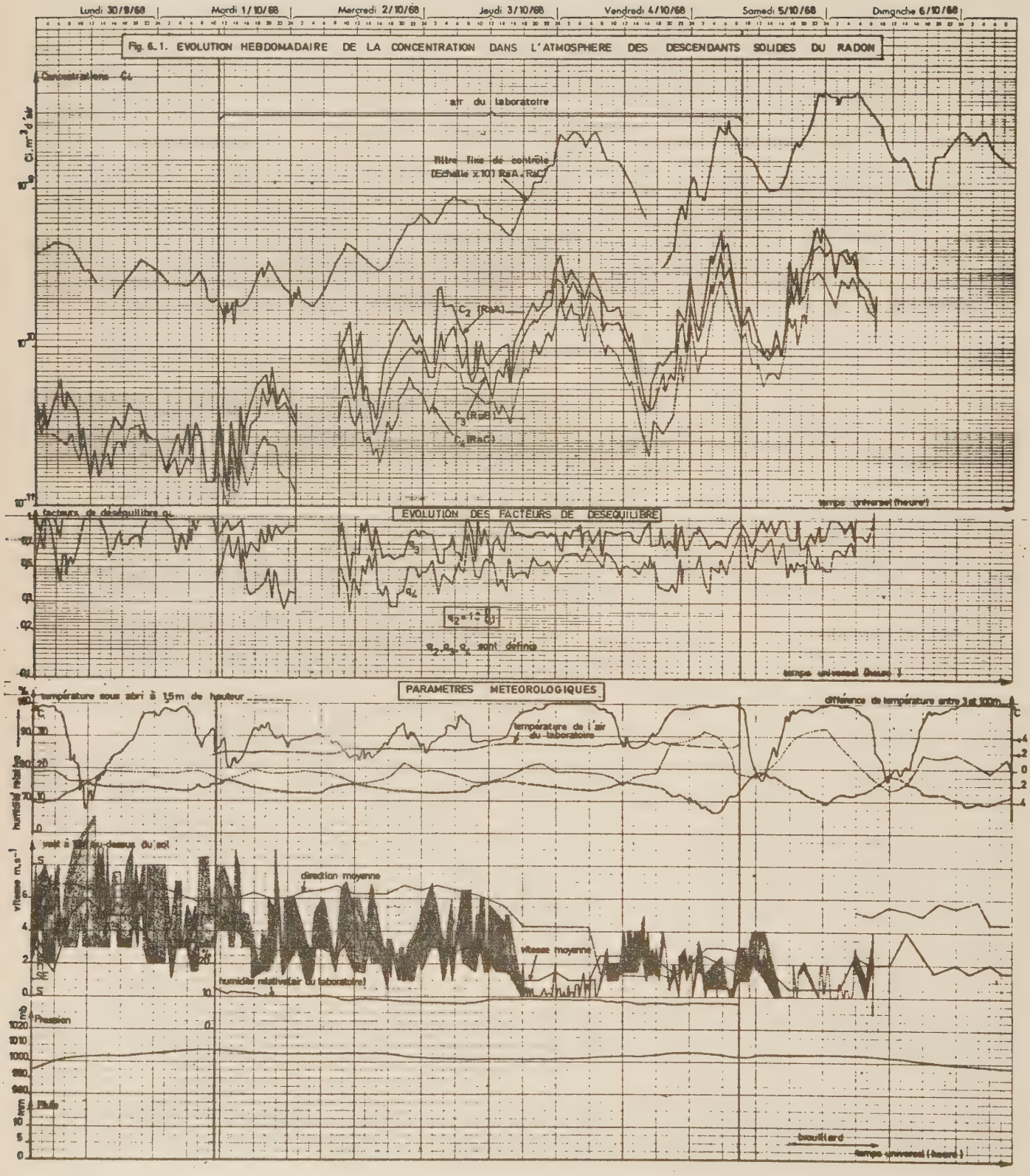


Fig. 61 _MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DE CHAQUE DESCENDANT DU RADON DANS L'AIR D'UN LABORATOIRE NON VENTILE ET NON FILTRE

montre que concentrations et déséquilibres présentent des fluctuations rapides analogues à celles obtenues dans l'atmosphère extérieure, mais moins accentuées la nuit où le local est fermé (sauf une fenêtre qui reste entrouverte).

Le déséquilibre se maintient en moyenne à des valeurs plus grandes qu'à l'extérieur même. Il faut attribuer ceci à deux faits :

1- Les deux appareils aspirent l'air extérieur, le débarrasse des descendants et rejettent le radon seul à raison de 14 $m^3.h^{-1}$ dans un local de 100 m^3. Il y a donc appauvrissement en descendants.

2- L'air du laboratoire est très sec et la température élevée. Ceci donne lieu à un aérosol très mobile qui se dépose sur les objets présents dans le laboratoire.

Enfin la valeur moyenne du déséquilibre augmente le jour et diminue la nuit où l'atmosphère est calme, résultat déjà remarqué aux stations atmosphériques du CEN-SACLAY [67].

Le filtre fixe de contrôle mesure la concentration de l'air extérieur en descendants α, et montre que les fluctuations journalières des concentrations de l'air extérieur et de l'air intérieur restent bien correlées. Par contre, les fluctuations rapides des facteurs de déséquilibre ne suivent plus les fluctuations de l'amplitude et de la vitesse du vent. Elles sont dues au décalage dans le temps de l'évolution des concentrations de chaque descendant. L'évolution de la filiation devient indépendante de certains paramètres météorologiques.

3- VARIATIONS DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DE CHAQUE DESCENDANT DU RADON DANS UNE MINE D'URANIUM

3.1. Conditions de mesure

L'appareil n'étant pas spécialisé pour l'utilisation dans la mine même, nous nous sommes placés à la sortie d'un ventilateur primaire d'extraction de 18 ch débitant 11 $m^3.s^{-1}$ (mine de Margnac - Division Minière de la Crousille - Haute Vienne).

Les concentrations à mesurer étant élevées nous avons utilisé une membrane MF 30 de 0,3 µm de diamètre de pore et un débit de 12 $l.mn^{-1}$. Les temps de prélèvement et de mesure sont respectivement de 3 mm 30 s et 3 mn. Les taux de comptage théoriques sont pour $C_1 = 10^{-7}$ $Ci.m^{-3}$

$$\mathcal{F}_2 (3) = 43 \text{ imp.s}^{-1}$$

$$\mathcal{F}_3 (3) = 2q_2 + 56\ q_3 \text{ imp.s}^{-1}$$

$$\mathcal{F}_4 (3) = 0{,}4q_3 + 73\ q_4 \text{ imp.s}^{-1}$$

La concentration en radon est contrôlée par intermittence par la méthode employée sur place et dite "méthode des fioles scintillantes" / 68 /. La précision de mesure est supérieure à 15 % (probabilité 0,9).

3.2. Résultats des mesures

3.2.1. Concentrations et déséquilibre / 51 /

L'évolution des concentrations et des facteurs de déséquilibre relatifs à chaque descendant solide du radon est donnée par les figures 6.2 et 6.3.

Les concentrations en période d'arrêt de travail sont 5 à 10 fois plus faibles qu'en période de travail et sont très stables. La remontée rapide à la reprise du travail est due à l'accumulation du gaz radon et de ses descendants dans les extrémités de galeries, où les ventilations secondaires sont arrêtées pendant la période de repos. Dès l'arrivée du personnel sur les lieux de travail, elles sont mises en marche entraînant une quantité importante de radon et de descendants qui se retrouvent dans la ventilation primaire.

Le déséquilibre en période de repos dépend uniquement des ventilations. Il est légèrement plus petit qu'en période de travail. En moyenne on a :

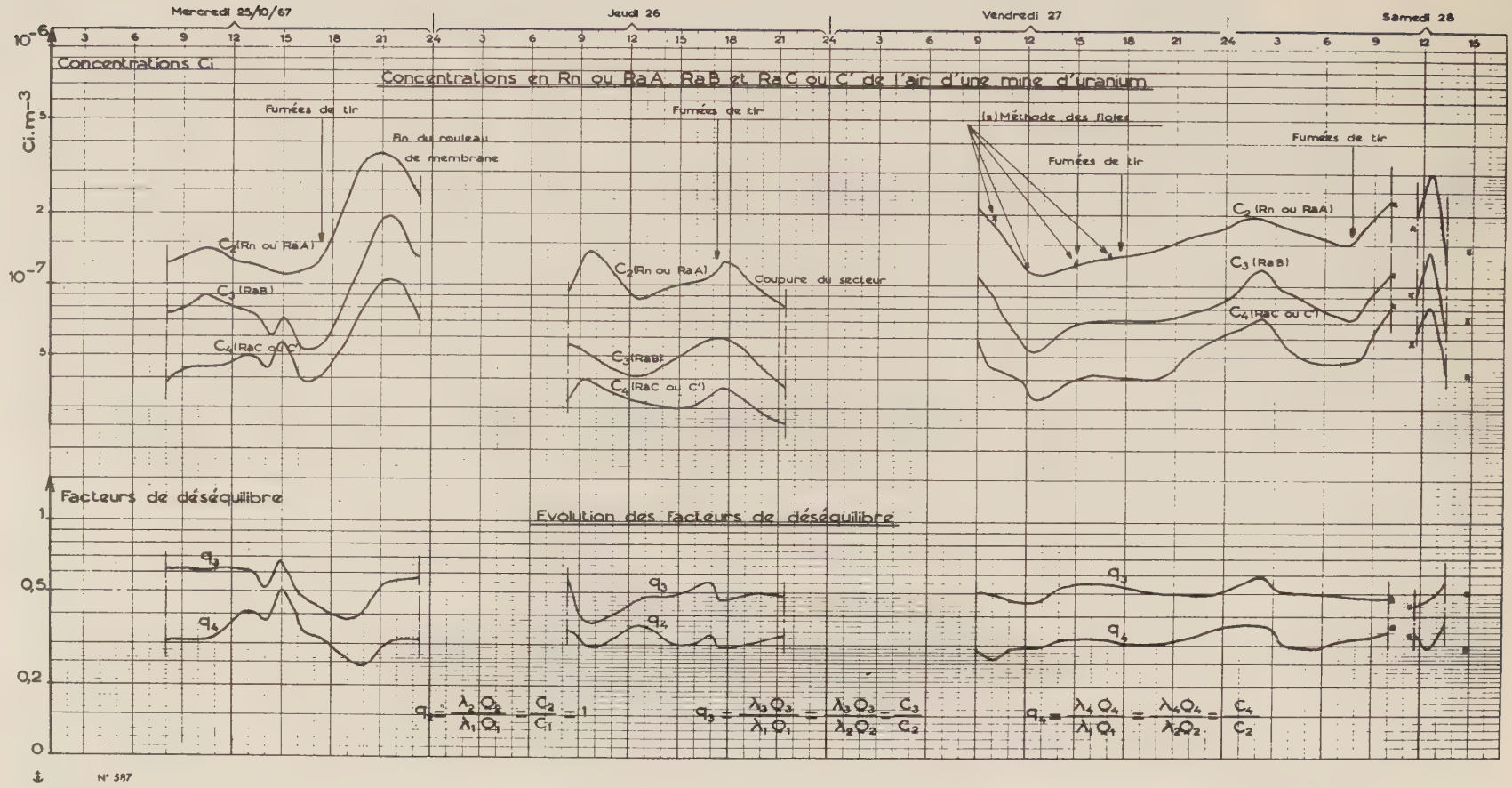
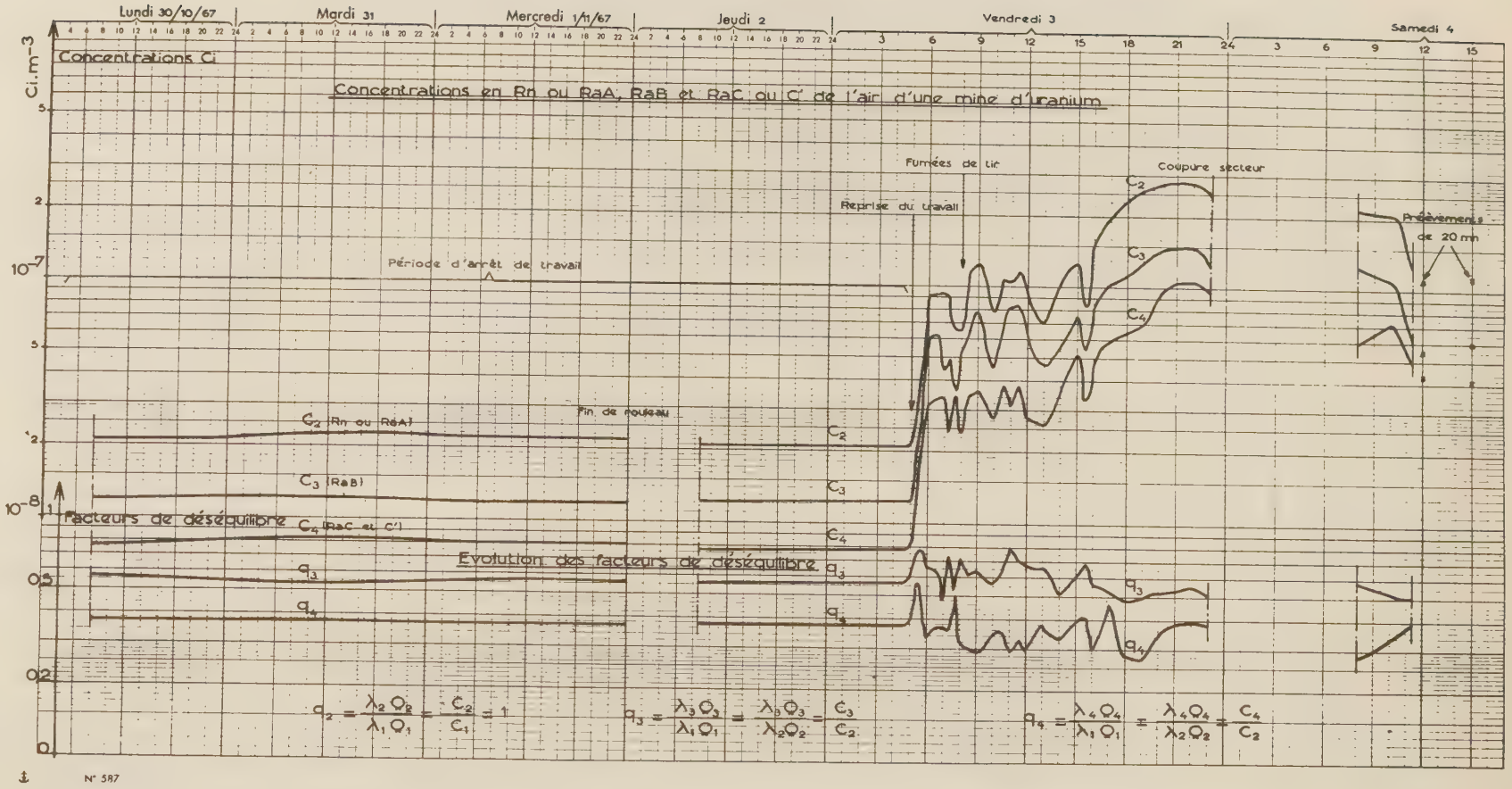


Fig. 6_2 CONCENTRATIONS ET DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON A LA SORTIE DES VENTILATIONS PRIMAIRES D'UNE MINE D'URANIUM.



$$q_2 = \frac{\lambda_2 Q_2}{\lambda_1 Q_1} = \frac{C_2}{C_1} = 1 \qquad q_3 = \frac{\lambda_3 Q_3}{\lambda_1 Q_1} = \frac{\lambda_3 Q_3}{\lambda_2 Q_2} = \frac{C_3}{C_2} \qquad q_4 = \frac{\lambda_4 Q_4}{\lambda_1 Q_1} = \frac{\lambda_4 Q_4}{\lambda_2 Q_2} = \frac{C_4}{C_2}$$

Fig. 6_3. CONCENTRATIONS ET DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON A LA SORTIE DES VENTILATIONS PRIMAIRES D'UNE USINE D'URANIUM.

. période d'arrêt de travail $\bar{q}_2 = 1 \quad \bar{q}_3 = 0,55 \quad \bar{q}_4 = 0,37$

. période de travail $\bar{q}_2 = 1 \quad \bar{q}_3 = 0,50 \quad \bar{q}_4 = 0,33$

Ces résultats s'expliquent car le gaz radon se libère plus facilement de la roche que ses descendants. Ils sont en bon accord avec ceux du chapitre 4.

3.2.2. Spectre α d'un échantillon de l'aérosol de mine

Au cours de nos mesures nous avons relevé le spectre α de nombreux échantillons de l'aérosol de la mine à la sortie des ventilations. La figure 6.4 représente deux spectres d'échantillons correspondant à une sortie importante de fumées de tir. La séparation du RaA et du RaC' reste très bonne.

Le dégradé énergétique conduit à une pénétration de 0,461 $mg.cm^{-2}$. L'activité spécifique est égale au 1/100ème de l'activité superficielle et la perte d'énergie des particules α produites à cette profondeur est de 0,14 MeV. Le rapport du nombre de particules sortant du filtre dans 2π au nombre total de particules produites dans le filtre est de 0,493.

Ces résultats sont obtenus par la méthode de Monte Carlo pour un coefficient d'efficacité μ de la membrane MF 30 égal à 10.

3.2.3. Mise en évidence de l'actinium C

Les spectres de la figure 6.4 mettent en évidence la présence d'un pic situé à 6,62 MeV disparaissant par décroissance aussi rapidement que le RaA.

Seul l'actinium C ($^{212}_{81}B_i$) peut satisfaire à ces conditions. Il est émetteur α à 99 % -énergies 6,62 MeV (83 %) et 6,27 MeV (17 %) - période 2,16 minutes.

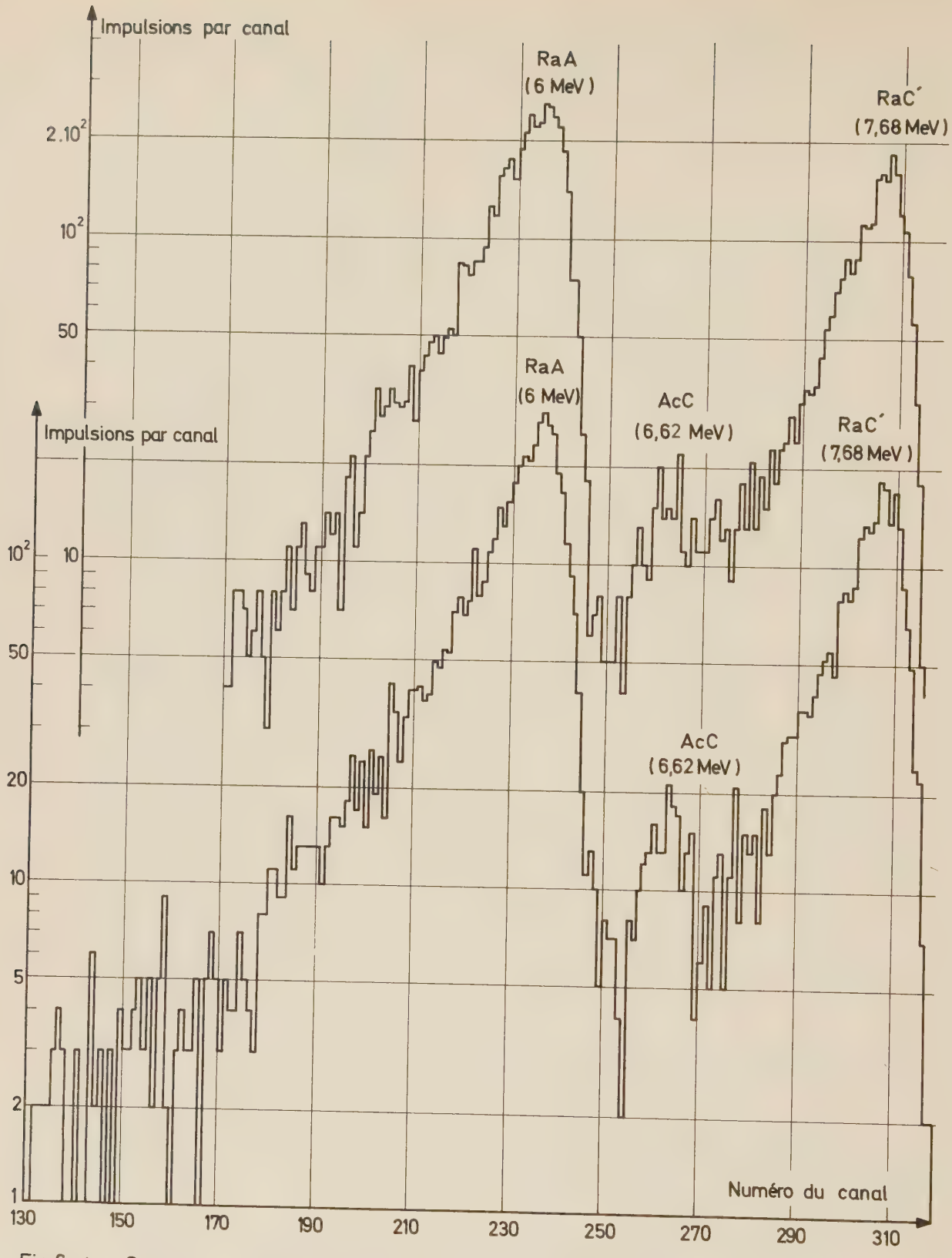


Fig. 6_4 _ Spectres de l'aérosol d'une mine d'uranium à la sortie d'un ventilateur primaire d'extraction

L'Actinium C' existe vraisemblablement mais il est noyé dans le reste du spectre du RaC' (AcC'' : E_α = 7,44 MeV).

Le pic de l'AcC est apparu sur de nombreux spectres identiques à celui de la figure 6.4. et relevés à des jours différents.

La présence de cet élément contribue à une mauvaise séparation spectrométrique entre le RaA et le RaC'. Il en résulte une surestimation des concentrations, plus importante pour le RaC'. Les concentrations réelles en RaC' sont donc plus faibles que celles enregistrées ; le facteur q_4 est plus petit.

Supposons l'équilibre radioactif établi entre AcB et AcC ; effectuons une estimation grossière du comptage dû à l'AcC. L'application des formules A_{18} du formulaire de l'annexe 2 à la filiation de l'actinon nous permet de calculer la concentration en AcB ou AcC soit :

$$\text{concentration en AcB ou AcC} \approx 10^{-9}\ \text{Ci.m}^{-3}$$

Ce résultat est à rapprocher des mesures de l'actinon dans l'air effectuées par GUEDALIA [69]. Les prélèvements sont effectués à une trentaine de mètres d'un minerai d'uranium. GUEDALIA donne des concentrations en actinon dans l'air de l'ordre de 1 à 4.10^{-9} Ci.m^{-3}. La concordance des résultats est très satisfaisante étant donné le manque de précision dans l'évaluation des taux de comptage, et l'incertitude sur l'état d'équilibre entre AcB et AcC.

La présence des descendants de l'actinon a été confirmée en laboratoire, par des prélèvements de l'air d'une enceinte renfermant un morceau de minerai d'uranium rapporté de la mine.

3.3. Comparaison des résultats relatifs au déséquilibre de la filiation du radon.

La méthode de la courbe de décroissance des descendants α (RaA + RaC') est utilisée depuis plusieurs années par divers auteurs [24 - 25] pour déterminer le déséquilibre de la filiation du

radon dans une mine d'uranium.

A. CHAPUIS ayant effectué des mesures au fond de la mine simultanément avec les nôtres, nous avons comparé nos résultats.

. déséquilibre obtenu par CHAPUIS dans une galarie, loin d'un poste de travail :

$$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,5 \qquad q_4 = 0,4$$

. déséquilibre obtenu par notre méthode :

$$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,505 \qquad q_4 = 0,394$$

Un échantillon a été étudié en décroissance, pendant 90 minutes, et la courbe expérimentale comparée à des réseaux de courbes théoriques, établis par CHAPUIS, pour diverses valeurs des facteurs de déséquilibre. Le temps de prélèvement était de 30 minutes comme dans la méthode de CHAPUIS. Le déséquilibre obtenu est :

$$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,5 \qquad q_4 = 0,4$$

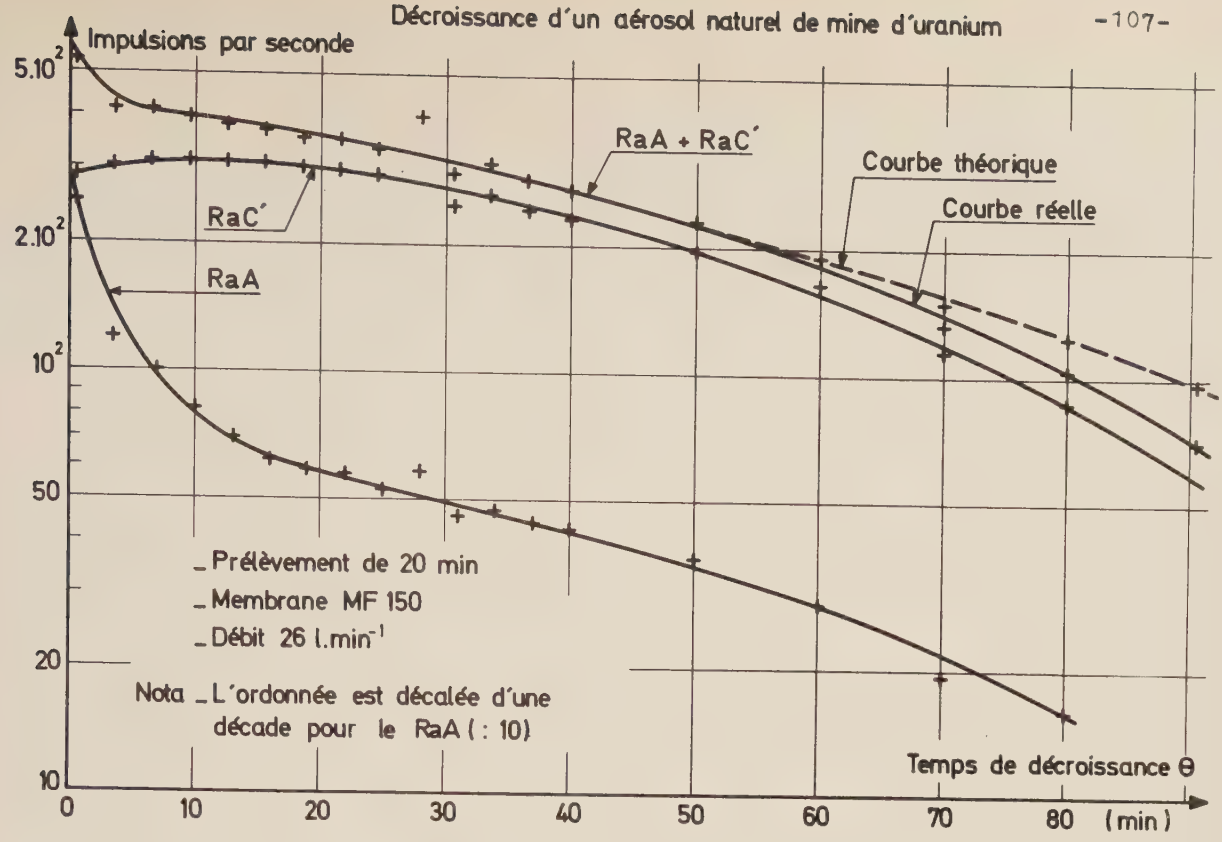
Chaque méthode conduit à des résultats directement comparables et en bon accord. Ce fait est aussi confirmé par CHAPUIS [67] qui utilise maintenant la méthode spectrométrique plus souple et plus précise.

3.4. Incidence du type de membrane sur les résultats

Des mesures effectuées avec une membrane MF 150 de 1,2 µm de diamètre de pore donnaient le déséquilibre suivant :

$$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,53 \qquad q_4 = 0,274$$

Des spectres de certains prélèvements ont montré une mauvaise séparation du RaA et du RaC', confirmée par les courbes de décroissance (figure 6.5.).



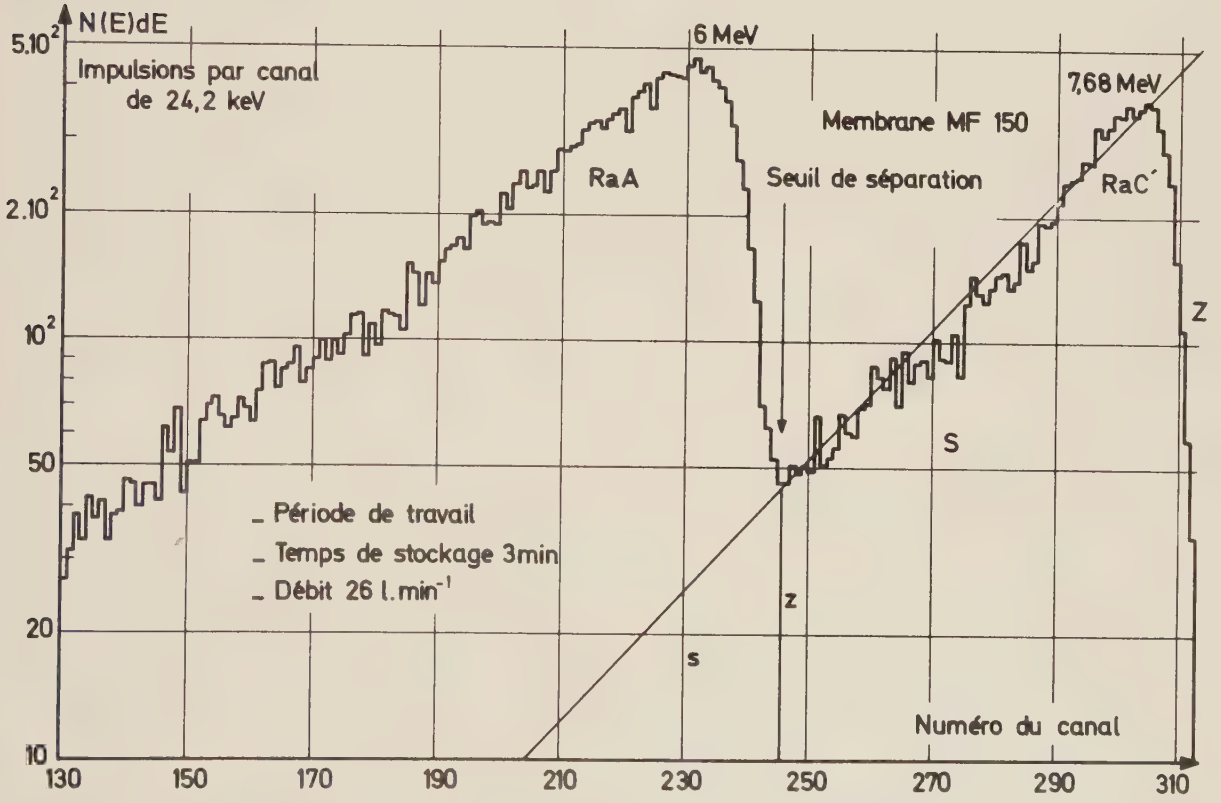


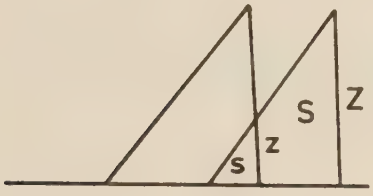
Fig. 6_5 _ Influence du type de membrane sur les facteurs de déséquibre - Correction du dégradé énergétique

Nous remarquons que la différence entre la courbe α totale et la courbe RaC est de 16 %. Cette correction appliquée au déséquilibre précédent donne :

$q_2 = 1 \qquad q_3 = 0,53 \qquad q_4 = 0,38$

Nous retrouvons les valeurs du paragraphe précédent.

La correction peut également se déduire de la méthode des "triangles équivalents" définie au chapitre 3, paragraphe 4.4.2.



$$\frac{s}{S} = \frac{z^2}{Z^2 - z^2}$$

Sur la figure 6.5. nous mesurons:

$z = 43$ mm $\qquad Z = 116$ mm

$$\frac{s}{S} = \frac{1860}{13200 - 1860} = \frac{1860}{11340} = 0,164$$

soit une correction de 16,4 % identique à la valeur obtenue à partir des courbes de décroissance.

3.5. Conclusion

Les concentrations en radon de l'air d'une mine d'uranium sont élevées mais restent au voisinage de la CMA (10^{-7} Ci.m^{-3} - radon gaz seul [71]), grâce à des ventilations puissantes. Les fluctuations de ces concentrations sont fonction des opérations de travail dans la mine (tir, extraction, etc...). En période de repos concentrations et déséquilibre sont d'une stabilité remarquable. Ceci montre que le déséquilibre est uniquement fonction des ventilations primaires. Il peut être différent très près des postes de travail où des ventilations secondaires servent d'appoint. Le fait que le déséquilibre de la filiation soit permanent et relativement stable conduit à une marge de sécurité pour l'application de la norme radon actuelle au personnel de la mine.

Des évolutions continues des facteurs de déséquilibre identiques à celles que nous venons de présenter devraient servir de support de base pour le calcul de la norme du radon et de ses descendants solides à vie courte.

4 - MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DE CHAQUE DESCENDANT DU RADON DANS UN LOCAL VENTILE ET FILTRE

4.1. Conditionnement du local [72]

Nos mesures ont été effectuées dans le premier sous-sol de la pile Osiris, niveau -4 mètres. Le volume du premier sous-sol est de 1750 m^3. L'air est renouvelé à taux constant par de l'air atmosphérique filtré dans les batteries de filtre en papier jaune Schneider Poelman placées à l'entrée du dispositif général de ventilation. Cet air est humidifié (hygrométrie relative 50 % ± 10 %) et régulé en température (20 ± 2 °C l'hiver, 25 ± 2 °C l'été). Ainsi conditionné, il est distribué par deux ventilateurs de débit nominal 33 000 $m^3.h^{-1}$ (sous 80 mm CE de perte de charge) dans les divers bâtiments de l'installation. L'air du premier sous-sol est renouvelé à raison de 11 000 $m^3.h^{-1}$ assurant une fréquence de renouvellement de $5,7.h^{-1}$. Le balayage est radial. L'air d'extraction est filtré en sortie dans des batteries de filtre rose. Le local est en dépression constante de 5 mm CE.

4.2. Etude théorique

D'après BILLARD [66] et dans l'hypothèse d'un équilibre du radon limité au RaA, nous avons :

a - ventilation homogène

La teneur de l'air en radionucléides naturels est identique en tout point du laboratoire. L'activité α à l'équilibre sur le filtre de prélèvement d'air à l'intérieur du local s'écrit, sans filtre d'entrée :

$$A_1 = Q_1 \lambda_1 \left(\frac{2}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3 + \mu} + \frac{\lambda_3}{(\lambda_3 + f)(\lambda_4 + f)} \right)$$

b - Ventilation tuyau

L'air introduit à l'instant t ne parvient au circuit d'extraction que lorsque la totalité de l'air qui se trouvait dans le laboratoire à l'instant t a été extraite. On suppose le détecteur près des bouches d'aspiration. L'activité α à l'équilibre sur le filtre s'écrit alors, sans filtre d'entrée :

$$A_1 = Q_1\lambda_1\left[\frac{2}{\lambda_2}+\frac{1}{\lambda_3}+\frac{1}{\lambda_4}- e^{\frac{-\lambda_3}{f}}\left(\frac{1}{\lambda_3}+\frac{1}{\lambda_4-\lambda_3}\right) e^{\frac{-\lambda_4}{f}}\frac{\lambda_3}{\lambda_4\,(\lambda_4-\lambda_3)}\right]$$

Q_1 est le nombre d'atomes de radon par unité de volume de l'air du local, f est la fréquence de renouvellement en S^{-1}, λ_1, λ_2, λ_3, λ_4 sont les constantes radioactives du radon et de ses descendants.

$$f = \frac{\text{débit de ventilation}}{\text{volume du local}} = \frac{D}{V}$$

Calculons maintenant l'activité A_0 à l'équilibre sur le filtre de prélèvement avec filtre absolu à l'entrée du local

a- ventilation homogène

$$A_0 = Q_1\lambda_1\left[\frac{2}{\lambda_2+f}+\frac{\lambda_2}{(\lambda_2+f)(\lambda_3+f)}+\frac{\lambda_2\lambda_3}{(\lambda_2+f)(\lambda_3+f)(\lambda_4+f)}\right]$$

b - ventilation tuyau

$$A_0 = Q_1\lambda_1\left[\frac{2}{\lambda_2}+\frac{1}{\lambda_3}+\frac{1}{\lambda_4}\left(-\frac{2}{\lambda_2}-\frac{1}{\lambda_2-\lambda_3}+\frac{\lambda_3}{(\lambda_2-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_4)}\right) e^{\frac{-\lambda_2}{f}}\right.$$

$$\left.-\frac{\lambda_2}{\lambda_2-\lambda_3}\left(\frac{1}{\lambda_3}+\frac{1}{\lambda_4-\lambda_3}\right) e^{\frac{-\lambda_3}{f}} + \frac{\lambda_2\,\lambda_3}{\lambda_4(\lambda_2-\lambda_4)(\lambda_4-\lambda_3)} e^{\frac{-\lambda_4}{f}}\right]$$

Le rapport $K_0 = \frac{A_0}{A_1}$ représente le coefficient de réduction de la radioactivité naturelle présente sur le filtre de prélèvement.

Pour f = 6, cas de notre lieu de prélèvement il vient

ventilation homogène	$K_0 = 0,7$
ventilation tuyau	$K_0 = 0,74$

Ces valeurs correspondent à un filtre d'entrée absolu. Ce sont des valeurs limites.

Le filtre jaune a une efficacité de 0,07 pour un aérosol de 0,3 μ ∠ 73 7 (rendement 93 %). Il n'est pas absolu. K_0 prend la valeur K et A_0 la valeur A, et l'on a

$$C \approx 1{,}5\ C_0$$

Ceci signifie que la perméabilité est plus grande que la réalité c'est-à-dire qu'il n'ya pratiquement pas de réduction de l'activité naturelle.

4.3. Etude expérimentale

L'appareil prélève en continu dans le local. Un filtre fixe mesure la concentration en descendants α (RaA + RaC') de l'air extérieur. Les résultats de mesure sont donnés sur la figure 6.6.

Les concentrations à l'intérieur du local suivent l'évolution des concentrations de l'air extérieur. Elles ont même valeur si l'on tient compte de l'absorption des poussières dans le filtre rose du filtre fixe de contrôle (multiplier la concentration de la courbe par 1,5).

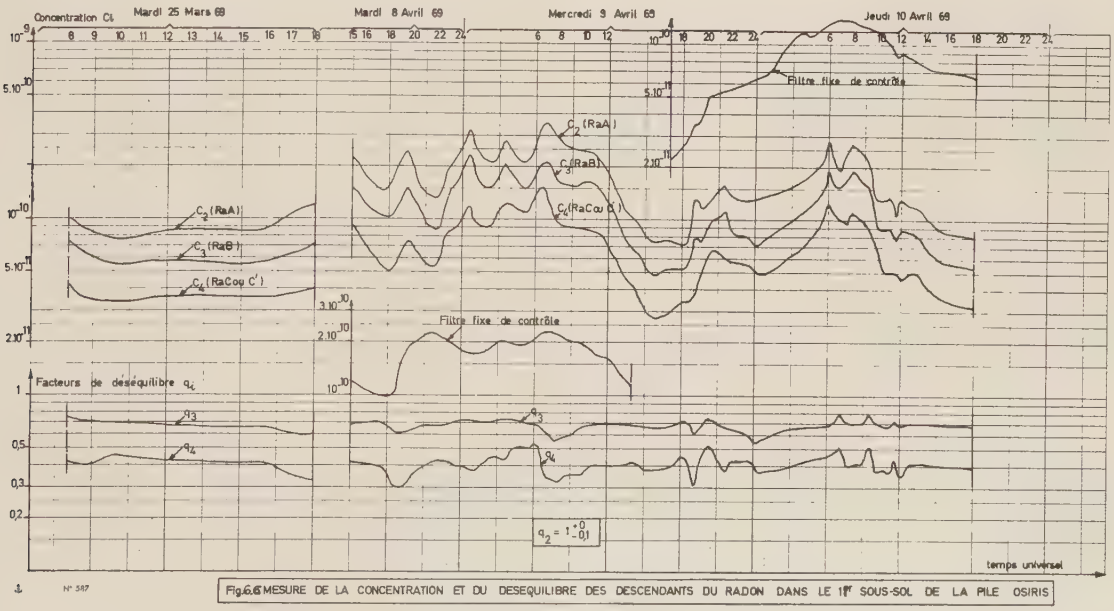


Fig.6.6 MESURE DE LA CONCENTRATION ET DU DESEQUILIBRE DES DESCENDANTS DU RADON DANS LE 1er SOUS-SOL DE LA PILE OSIRIS

Le déséquilibre présente une valeur moyenne constante

$\bar{q}_2 = 1$ $\bar{q}_3 = 0,7$ $\bar{q}_4 = 0,4$

Nous retrouvons la stabilité des valeurs moyennes du déséquilibre de la mine. Là encore,le déséquilibre ne dépend que des ventilations alors que les concentrations sont fonction des filtres d'entrée.

L'expérience vérifie les conclusions théoriques du paragraphe précédent. Il n'y a pas de réduction du bruit de fond dû à l'activité naturelle. Ce résultat n'est valable que si l'appareil se trouve placé dans la veine d'air comme c'était le cas. En dehors de la veine il existe des zones mortes où les concentrations peuvent être totalement différentes / 74 7.

4.4. Conclusion

Ce résultat est une double vérification de nos mesures. Il concorde avec la théorie mais il prouve également que la filiation du radon n'est pas toujours à l'équilibre dans l'atmosphère près du sol comme l'ont montré nos mesures du chapitre 5.

Des filtres d'entrée quasi absolus (filtre rose) et une fréquence de renouvellement plus importante n'apporteraient pas grand chose à la réduction du bruit de fond naturel de l'installation. En revanche ils coûteraient fort cher / 64 7.

CONCLUSION GENERALE

La mesure des radionucléides artificiels nécessite une connaissance approfondie de la composante naturelle de bruit de fond due principalement à la filiation du radon.

Nous avons consacré notre travail à mesurer avec soins, les concentrations dans l'atmosphère et dans les locaux conditionnés de toute nature existant dans les centres d'études nucléaires et autres installations, et surtout à donner des évolutions continues de l'état d'équilibre de la filiation.

Pour cela, nous avons dû développer les équations théoriques d'évolution de la filiation afin de déduire les concentrations des taux de comptage. En marge de ces calculs théoriques nous avons choisi les limites de variation des paramètres de prélèvement de l'appareil de mesure.

Pour séparer chaque descendant α par spectrométrie, nous avons choisi pour support, les membranes, qui permettent une bonne séparation. Pour que la séparation soit bonne, il fallait également que la pénétration de l'aérosol dans la membrane soit la plus faible possible. De la faible pénétration dépend l'évaluation exacte des concentrations. Ceci nous a conduits à développer une technique de mesure de l'autoabsorption des α et à accéder au rendement de détection théorique et au facteur de correction associé.

Cette technique est très prometteuse et doit être encore développée car elle devrait trouver de nombreuses applications dans les laboratoires de mesure d'échantillons radioactifs. Des applications annexes telles que l'étude du pouvoir d'arrêt des particules α, le straggling de ces particules peuvent également être effectuées.

Etant en mesure d'évaluer avec précision l'activité réelle déposée sur le filtre nous avons élaboré l'appareil de mesure, donné son fonctionnement et développé la méthode d'étalonnage et les cor-

rections associées. Nous avons défini la précision de mesure en fonction des paramètres de prélèvement pour une probabilité constante.

L'expérimentation s'est faite en trois stades. Le premier, consacré à l'étude du radon et de son déséquilibre avec le RaA, nous a permis de montrer que le radon n'est pas accompagné de ses descendants quand il se dégage du sol ou des matériaux. Une série de mesures sur le déséquilibre radon-RaA nous a amenés à conclure à l'équilibre permanent entre radon et RaA dans la limite de précision de ces mesures. Nous n'avons pas trouvé de travaux similaires dans la littérature. Un travail important reste à accomplir sur ce sujet.

Dans la seconde partie de notre expérimentation nous nous sommes attachés à mesurer la concentration et le déséquilibre de chaque descendant dans l'atmosphère près du sol. Nous avons présenté une longue série de mesures qui prouvent que le déséquilibre de la filiation du radon existe fréquemment, alors que l'on suppose couramment l'état d'équilibre permanent de la filiation.

Les enregistrements ont montré que les concentrations et les facteurs de déséquilibre présentent des fluctuations rapides et importantes liées aux mouvements de l'atmosphère, principalement à l'amplitude de la vitesse du vent qui joue un très grand rôle. Ces enregistrements confirment la supériorité de la méthode de mesure relativement à la fidèlité de reproduction des fluctuations rapides des concentrations.

Enfin la troisième partie de l'expérimentation nous a permis d'étudier la concentration et le déséquilibre des descendants dans les locaux conditionnés. Nous avons montré que l'air d'une pièce non ventilée et non filtrée présente des fluctuations des concentrations et des déséquilibres identiques à l'air extérieur. L'appareil, s'il était spécialisé, peut s'appliquer à la mesure des concentrations en descendants du radon dans les mines d'uranium. Nous avons mis en évidence la dépendance étroite du déséquilibre

avec la ventilation, ainsi que la présence de l'actinium C.

Dans les locaux ventilés et filtrés, nous avons montré que le bruit de fond naturel à l'intérieur du local est identique à celui de l'extérieur. Ce résultat confirme l'existence d'un déséquilibre de la filiation dans l'atmosphère. Il constitue une double vérification de nos mesures expérimentales.

Tous les résultats que nous venons de rappeler brièvement devraient contribuer à une meilleure connaissance de l'activité naturelle de l'atmosphère. Ils devraient constituer des résultats utiles pour le calcul des concentrations maximales admissibles du radon et de ses descendants solides à vie courte.

En dernière conclusion, précisons que l'étude de la filiation du radon n'est pas la seule application de la méthode de mesure. L'appareil peut facilement s'adapter à la mesure de la contamination artificielle de l'air, tout en servant de spectromètre α en cas d'incident. L'utilisateur disposerait enfin d'un appareil remplissant véritablement le double rôle d'alarme et de mesure, grâce au renouvellement constant de l'échantillon, renouvellement programmable à distance.

B I B L I O G R A P H I E

[1] ELSTER, J. et GEITEL, H.
Uber eine fernere analogie in dem elektrischen Verhalten der naturlichen un der durch Becquerelstralslem abnorm leitend germachten
Luft. Phys. Z. 1901 - 2 - 590-593

[2] Rapport du comité scientifique des nations unies
1958 - 17 - (A/13.838) annexe B - 58

[3] SERVANT, J.
Le radon et ses dérivés à vie courte dans la basse atmosphère.
Rapport CEA - R.2434. 1964 (thèse).

[4] Collectif
Mesure de la répartition verticale des concentrations du radon et du thoron et de leurs descendants dans l'air. Application à l'étude de la diffusion verticale.
Centre de phys. nucl. Fac. Sci. Toulouse ; 1965.

[5] RENOUX A.
Etude des petits et gros ions radioactifs de l'atmosphère
Thèse 3ème cycle. Paris 1961.

[6] LABEYRIE, J.
Mesure de la concentration des aérosols émetteurs radioactifs α.
Rapport CEA 335 - 1954 (thèse)

[7] JEHANNO, C., BLANC, A., LALLEMANT, C., ROUX, G.,
Appareils récents et méthodes nouvelles pour la mesure de la concentration des produits radioactifs dans l'atmosphère.
Conf. Genève 15/P/329 - 1958.

B I B L I O G R A P H I E -suite 2-

/ 8 7 BILLARD, F., MIRIBEL, PRADEL, J.,
Contrôle de la contamination atmosphérique par "double mandarin"
Rapport CEA 2085 - 1961.

/ 9 7 BARON, H.,
Appareil d'alerte de la contamination atmosphérique α
Rapport SPR/DAM - 1963.

/ 10 7 ALLENDEN, D., and HUNT, S.E.,
A new surveillance monitor for uranium and plutonium in the atmosphere.
Congrès Mesucora - PARIS 1963.

/ 11 7 RICHARD-FOY, R.,
Un nouveau détecteur d'aérosols radioactifs transistorisé et à précipitation électrostatique.
Ind. atomiques 1964 - 11. 117-121 .

/ 12 7 GRIFFIN, BI, and ROESCH, W.C.,
Plutonium X ray scintillation counters
Report HW 77609 - 1963.

/ 13 7 TANAEVSKY, O., et VASSY, E.,
Variations de la radioactivité naturelle et artificielle de l'atmosphère.
C.R. Acad. sci. PARIS 1955 - 241 - 38.40.

/ 14 7 TANAEVSKY, O., et VASSY, E.,
Radioactivité naturelle et artificielle de l'atmosphère.
Ann de Géoph. 1955 - 11 - 4 - 486.490

/ 15 7 SERVANT, J.,
Le radon et ses dérivés à vie courte dans la basse atmosphère
Rapport DE/SEP - 1960 - 1381/174.

/ 16 7 SERVANT, J. et TANAEVSKY, O.,
Mesure de la radioactivité naturelle dans la région parisienne
Ann de géoph. 1961 - 17 - 405-409.

B I B L I O G R A P H I E -suite 3-

[17] BEHOUNEK and MAJEROVA, M.
Radon content in the air
Nature - 1966 - 178 - 29 - 1457.

[18] MALAKOV, S.G.,
Répartition verticale des émanations radioactives dans l'atmosphère.
Traduction de Izvest. Akad. Nauk SSSR. Ser Geofiz 1959 - 9 - 1342-1352.

[19] JACOBI, W.,
Uber das Verhalten der Zerfallsprodukte des radons in des Atmosphäre
Beitrage Zur Physik des Atmosphäre Bd 31.1959.244-257.

[20] FONTAN, J., BLANC. D., BONNAFOUS, M., BOUVILLE, A.,
Dosage du radon et du thoron contenus dans l'air atmosphérique. Application à l'étude de l'équilibre radioactif entre ces gaz et leurs descendants.
J. de Phys. et radium 1961 - 22 - 11 - 179A.

[21] FONTAN, J., BLANC, D., BOUVILLE, A., LAMBERT, G.
Mesure de la radioactivité naturelle de l'air (radon et thoron) au-dessus de l'océan atlantique.
J. de mécanique et Phys. 1962 - II - 15 - 108-113.

[22] FONTAN, J.,
Le dosage des radioéléments gazeux donnant des produits radioactifs de filiation.
Son application à la mesure de la radioactivité naturelle de l'atmosphère.
Thèse Doc. ès. Sci. Fac. Sci. Toulouse 1964.

[23] FONTAN, J., BIROT, A., BLANC, D.
Variation de la concentration des gaz radioactifs naturels et de l'équilibre entre ces gaz et leurs descendants dans l'air, au niveau du sol.
Géophysica et météorologia - 1964 - XIII - 314 - 80-87.

B I B L I O G R A P H I E (suite 4)

[24] TSIVOGLOU, EC., AYER, HE., HOLADAY, DA.,
Occurence of nonequilibrium atmospheric mixtures of radon and its daughters.
Nucleonics 1953 - 11 - 9 - 40-45.

[25] CHAPUIS, A.,
Mesure de la concentration en radon et de la granulométrie des ions radioactifs dans une mine d'uranium.
Thèse 3ème cycle. Fac. Sci. Toulouse 1966.

[26] DSHELEPOV BS., and PECKER, LK.,
Decay schemas of radioactive nuclei.
Pergamon press. 1961

[27] KOLENKOW, RJ., and MANLY, P.J.,
Energy Loss of alpha Rays in matter.Report WIT 952-4 - 1967

[28] EVANS, R.D.,
The atomic nucleus ch. 22 - p. 652
Mc. Graw Hill Book Compagny - 1955.

[29] BOHR, N.,
On the Decrease of Velocity of Swifthy Moving Electrifed Particles in passing through Matter.
Phil. Mag. 1915 - 30 - 581.

[30] WILLIAMS, E.J.,
The passage of α and β Particles through Matter and Bornis Theory of Collisions.
Proc. Roy. Soc. London 1932 - A135-108

[31] STERNHEIMER, R.M.,
Densitv effect for the ionisation Loss of Charged Particles.
Phys. Rev. 1966 - 145 - 1 - 247-250.

[32] BARKAS, W.H., and BERGER, M.J.,
Studies in penetration of charged particles in matter - section 7
NAS-NRC publication 1133. Nuclear sciences séries report 39.Ed 1967

B I B L I O G R A P H I E (suite 5)

[33] HODGMAN, C.D., and all.
Handbook of chemistry and physics. 44ème ed.
The Chemical Rubber Publishing Co-1963.

[34] BICHSEL, H.,
A critical review of experimental stopping power and range data. Section 2.
NAS-NRC publication 1133-Nuclear sciences séries report 39 Ed. 1967.

[35] DEARNALEY, G., and NORTHROP, D.C.,
Semiconductor counters for nuclear radiations.
E. et F.N. SPON limited - London- 1964.

[36] KOCHAROV, G.E., and KOROLEV, G.A.,
A high resolution alpha spectrometer.
Bulletin of the academy of sciences URSS - physical series
1961 - 25 - 2 - 22.

[37] Notice technique
Filtres et appareillages - catalogue MF - 38
Millipore SA - 92 Malakoff.

[38] Notice technique
Membranes filtrantes - Information MI 139 .
Labo moderne - PARIS 1er

[39] TOWNSEND, J.S.,
IV - The Diffusion of Ions into Gases.
Phil. Trans. Roy. Soc. London - 1899 - 139 A - 129

[40] SPURNY, K., and PICH, J.,
Analytical methods for determination of aerosols by means of membrane ultrafilters VII.
Diffusion and impaction precipitation of aerosol particles by membrane ultrafilters.
Collection Czéchoslov. Chem. Commum. 1965 - 30 - 2276

B I B L I O G R A P H I E (suite 6)

[41] GORMLEY, P.G.,
Diffusion from a stream flowing through a thin rectangular tube.
Proc. Roy. Irish. Acad. 1938 - 45 A - 59

[42] CORMLEY, P.G., and KENNEDY, M.,
Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube.
Proc. Roy. Irish. Acad. 1949 - 52 A - 163

[43] TWOMEY, S.,
Equations for the decay by diffusion of particles in an aérosol flowing through circular and rectangular channels.
Bull. de l'observatoire du Puy de Dôme . 1962-4- 173-180.

[44] FONTAN J., BLANC, D., BOUVILLE, A.,
Determination du rendement de collection des filtres à fibres pour des particules ultra-fines.
Health Physics 1964 - 11 - 15-20

[45] MADELAINE, G.,
Etude du pouvoir d'arrêt de différents filtres.
Rapport CEA R 2432 - 1964.

[46] COCHINAL, R., et ROUBY, R.,
Etude de différents filtres.
Note CEA 290 - 1959.

[47] BILLARD, F., MADELAINE, G., PARNIANPOUR, H.,
Pénétration des aérosols dans les filtres. Détermination de l'autoabsorption α.

Congrès. Int. sur la protection du milieu devant le développement des utilisations pacifiques de l'énergie nucléaire.
Toulouse 14, 15, 16 Mars 1967.

[48] PARNIANPOUR, H.,
Etude de la pénétration des aérosols dans les couches filtrantes.
Rapport CEA R 3347 - 1967. (thèse)

B I B L I O G R A P H I E (suite 7)

/ 49 7 LASSEUR, C.,
Procédé et appareil d'enregistrement simultané de la concentration dans l'atmosphère des descendants solides à vie courte du radon.
Dépôt de brevet. PV 102649 - Avril 1967.

/ 50 7 LASSEUR, C.,
Appareil de dosage sélectif en continu de chaque descendant solide à vie courte du radon.
Colloque d'électronique nucléaire et de radioprotection - Tome 4. Toulouse 4-8 mars 1968.

/ 51 7 Compte rendu de mission effectuée du 23 octobre au 6 Novembre 67. à la mine de Margnac, division minière de la Crousille - 87
Rap. SPR/S/68-118-MM 11 CL/sa du 9.1.1968.

/ 52 7 GLEASON, G.I., TAYLOR, J.D., TABERN, D.L.,
Absolute beta counting a definied geometries.
Nucleonics 1951 - 8 - 5 - 12 - 20.

/ 53 7 CLUCHET, J.,
Evaluation de l'incertitude statistique affectant un comptage.
Note CEA N° 312 - 1960.

/ 54 7 ZERBIB, J.C.,
Méthodes d'étalonnage de sondes γ appliquées à la mesure quantitative des radioéléments.
Colloque Franco-allemand sur la mesure des rayonnements nucléaires à Regensburg 24-28. 10. 1966.

/ 55 7 CHRETIEN, L., LASSEUR, C., TONNELIER, C., ZERBIB, J.C.,
Note sur un ensemble de prélèvement sur filtre fixe type "Ariel".
Rapport SPR/66-1182-MM/54-JCZ/sa

/ 56 7 DRUILHET, A.,
Diffusion de la radioactivité naturelle de l'air dans les basses couches de l'atmosphère.
Thèse 3ème cycle. Toulouse, 1966.

B I B L I O G R A P H I E (suite 8)

/ 57 / BIROT, A., DRUILHET, A., MONTINTIN, H., GUEDALIA, D.,
Mesure de la répartition verticale des concentrations du radon et du thoron et de leurs descendants dans l'air.
Application à l'étude de la diffusion atmosphérique.
Fac. Sc. Toulouse - Rapport période du 1.2.64 au 1.3.65.

/ 58 / SUTTON, O.G.,
Micrometeorology.
Mc Graw Hill book company - 1953

/ 59 / FACY, L.,
Nuclear radiations in geophysics.
Springer - Verlag - Berlin, 1962, 200.

/ 60 / ISRAEL, H.,
Compendium of Meteorology.
Amer. Meteo. Soc. Boston. 1951 -p155.

/ 61 / CHEVALIER, M., DE CHOUDENS, H., JEANNE, G.,
Enregistreurs d'aérosols pour la détection α et β des contaminations.
Rapport interne SPR/CEN-Grenoble.

/ 62 / VOGT, E.W., STEWART, C.G., SIMPSON, S.D.,
Non equilibrium concentrations of radon daughters in a ventilated mine.
Report AECL 1926 - 1961.

/ 63 / FUSAMURA, N., FUROSAWA, R., MARUYAMA, M.,
Détermination of radon daughter products in mine air.
Symposium on instruments and techniques for the assessement of airborne radioactivity in nuclear opérations.
SM. 95/25, 3-7 july, Vienne 1967.

/ 64 / POHL-RULING, J., et POHL, E.,
The radon 222 concentration in the atmosphères of mines as a function of the barometric pressure.
Health Physics 1969 - 16- 579 - 584.

B I B L I O G R A P H I E (suite 9)

/ 65 7 HULTQUIST, B.,
Studies on naturally occuring ionizing radiations with special reference to radiation doses in swedish houses of various types.
Kungli-Svenska-Vetenskapsakademiens Handlingar.
Vo. 6 - série 4 -N3 - 1956.

/ 66 7 BILLARD, F., BRION, J., PRADEL, J.,
Rôle des filtres d'entrée dans les laboratoires de haute activité.
(Influence des caractéristiques de ventilation d'un local sur le niveau de radioactivité α, naturelle d'un filtre de prélèvement d'air).

Coll. Int. sur la pollution radioactive des milieux gazeux - tome II - CEN-SACLAY 1965, 365-371.

/ 67 7 MONET, R.,
Communication personnelle.

/ 68 7 BILLARD, F., MADELAINE, G., MIRIBEL, J., PRADEL, J.,
Méthodes de mesure du radon dans les mines d'uranium.

Compte rendu du colloque sur la protection radiologique dans l'extraction et le traitement des minerais uranifères.
A.I.E.A. Vienne 26-31 aout 1963.

/ 69 7 GUEDALIA, D.,
Contribution à l'étude de la radioactivité naturelle de l'atmosphère.Détection de l'actinon (Rn-219) et mesure du thoron (Rn-220).
Thèse de spécialité -Fac. Sci. Toulouse 1967.

/ 70 7 CHAPUIS, A., LOPEZ, A., LANEGRASSE, L.,
Mesure des fractions d'équilibre entre le radon et ses descendants dans les mines d'uranium par spectrométrie α.
Centre de physique nucléaire - Fac. Sci. Toulouse 1968.

/ 71 7 Journal Officiel - Lois et décrets
Décrets n° 67-228 du 15 Mars 1967, J.O. du 20 mars 1967.

B I B L I O G R A P H I E (suite 10)

[72] Collectif
Rapport de sûreté de la pile Osiris - 1966.

[73] LASSEUR, C.,
Papiers filtres Schneider-Poelman roses, jaunes, bleus pour appareils de mesure de la contamination atmosphérique.
Note CEA n° 1218 - 1969

[75] PEROTIN, J.P., and WERDERER, B.,
Radioactive contamination in workshops and laboratories.
II Collective protection techniques.
AERE Trans 1105 - 1968.

Manuscrit reçu le 11 juin 1970

ANNEXE 1

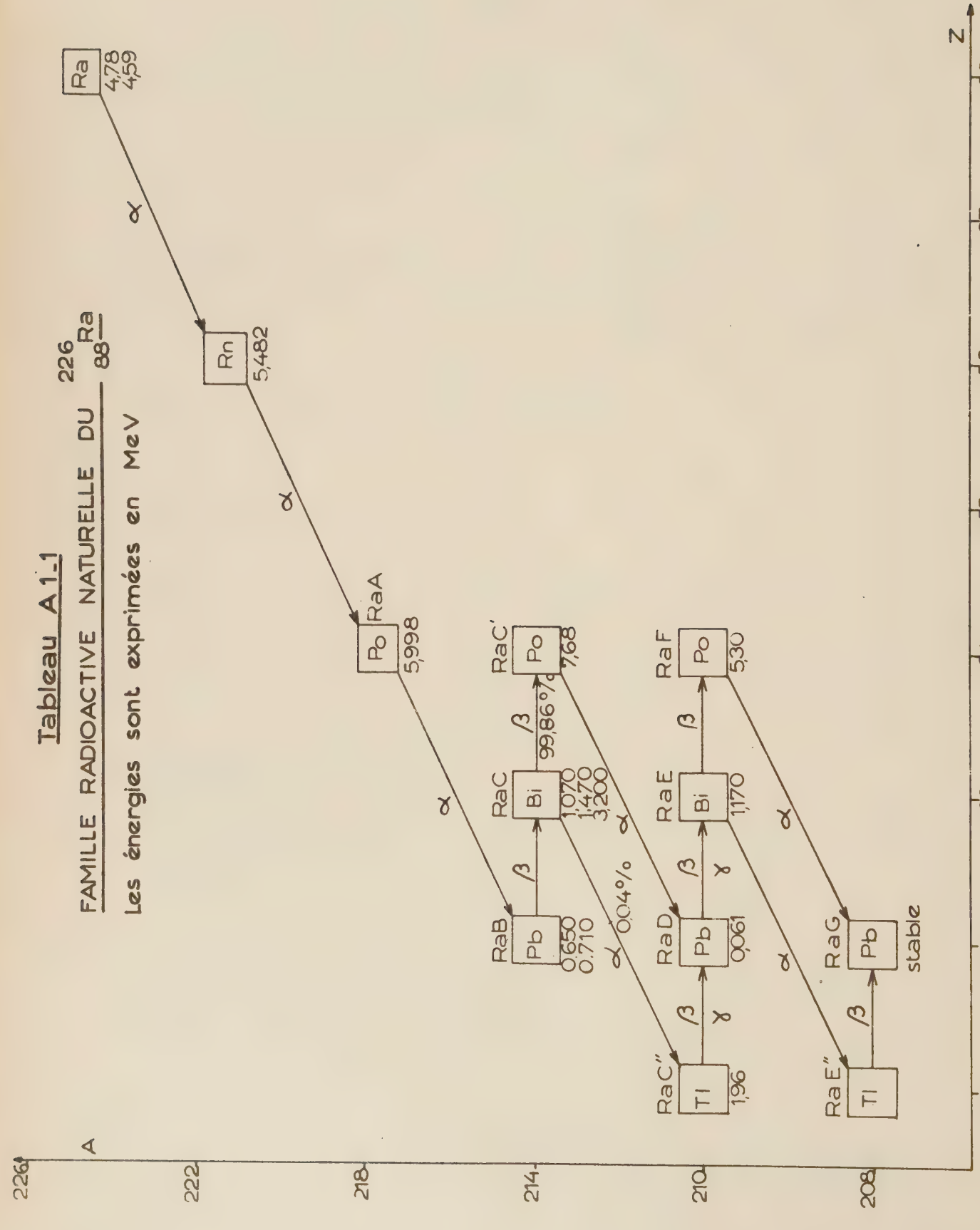
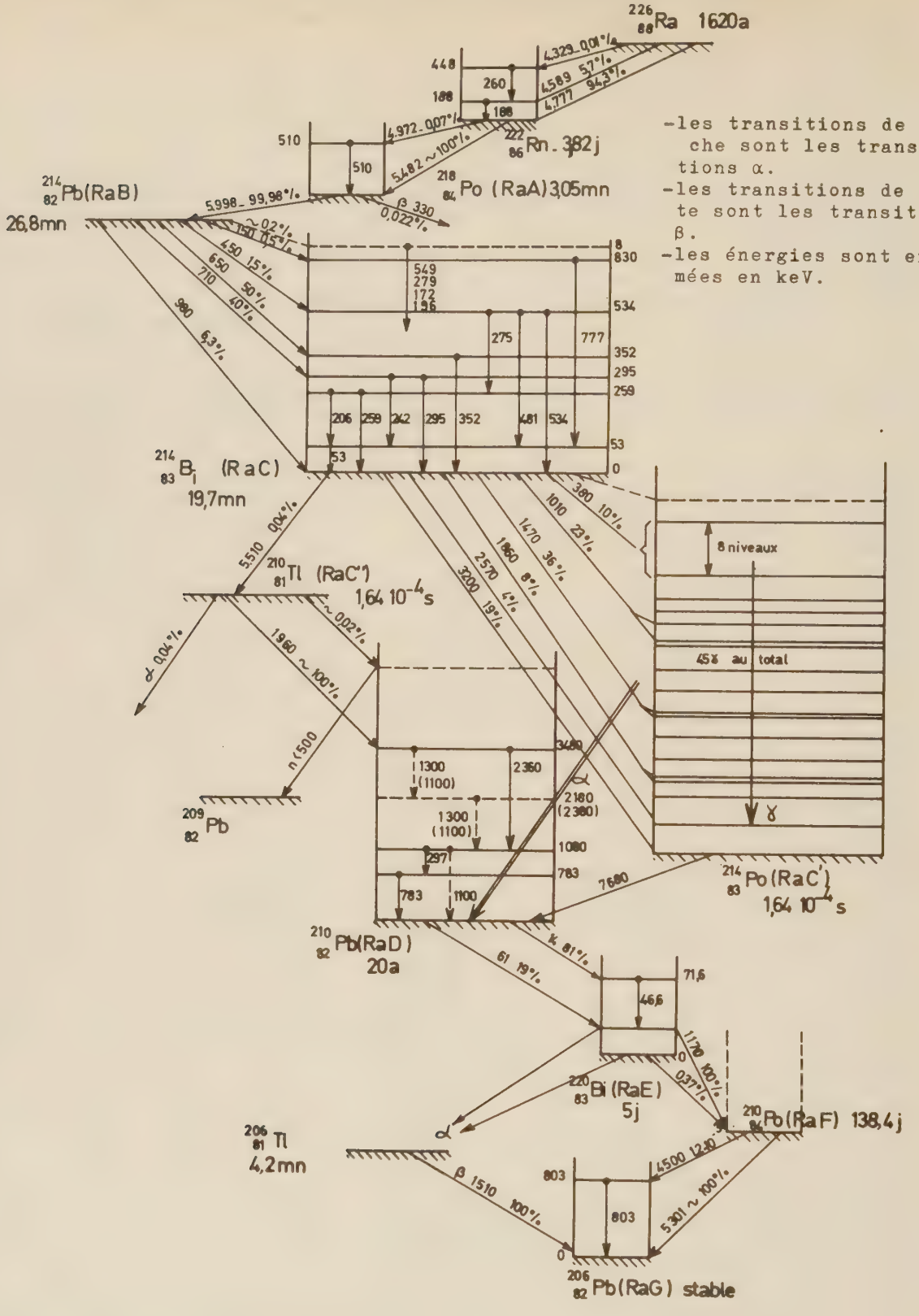


Tableau A 1.1
FAMILLE RADIOACTIVE NATURELLE DU 226 88 Ra
Les énergies sont exprimées en MeV
Ra
4,78
4,59
Rn
5,482
RaA
Po
5,998
RaB
Pb
0,650
0,710
RaC
Bi
1,070
1,470
3,200
99,86%
RaC'
Po
7,68
0,04%
RaC"
Tl
1,96
RaD
Pb
0,061
RaE
Bi
1,170
RaF
Po
5,30
RaE"
Tl
RaG
Pb
stable
α
β
γ
A
Z
226
222
218
214
210
208
81
82
83
84
85
86
87
88

Radionucléides	Indice relatif aux formules	Période T	constante radioactive λ en mn^{-1}	Energies principales du rayonnement émis en MeV			CMA * 168 h en $Ci.m^{-3}$		Coeffic.de diffusion moléculaire		Mobilité en $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$
				α	β	δ	eau	air	eau $cm^2.j^{-1}$	air $cm^2.s^{-1}$	
$^{226}_{88}Ra$(Radium)		1620 a	$8,139.10^{-10}$	4,78 4,59		0,260 0,188		sol 10^{-7} ins 3.10^{-4}	sol 10^{-11} ins 6.10^{-8}		
$^{222}_{86}Rn$ (Radon)	1	3,82 j	$1,26.10^{-4}$	5,482	0,650 0,710	0,510		10^{-7}	0,9-1	0,1	4,27
$^{218}_{84}Po$ (RaA)	2	3,05 mn	0,227	5,998	0,330					0,054	2,2
$^{214}_{82}Pb$ (RaB)	3	26,8 mn	$2,586.10^{-2}$	0,650 0,710	plu- sieurs					0,030	1,3
$^{214}_{83}Bi$ (RaC)	4	19,7 mn	$3,52.10^{-2}$	5,510	1,470 1,010 3,200	nombreux					
$^{214}_{84}Po$(RaC')		$1,64.10^{-4}$ s	$2,535.10^{7}$	7,680							
$^{210}_{81}Tl$(RaC")	5	1,32 mn	0,525		1,960	plusieurs					
$^{210}_{82}Pb$(RaD)		20 a	$6,59.10^{-8}$		0,014 0,061	0,0466	sol 10^{-6} ins 2.10^{-3}	sol 4.10^{-11} ins 8.10^{-11}			
$^{210}_{83}Bi$(RaE)		5 j	$9,625.10^{-5}$	4,940	1,170		4.10^{-4}	2.10^{-9}			
$^{210}_{84}Po$(RaF)		138,4j	$3,48.10^{-7}$	5,301		0,803	sol 7.10^{-6} ins 3.10^{-4}	sol 2.10^{-10} ins 7.10^{-11}			
$^{206}_{82}Pb$ (RaG)		stable	stable	stable	stable	stable	stable	stable			

* Les valeurs des CMA sont extraites du Journal Officiel [7 1]

A.1.3. Schémas de désintégration du $^{226}_{88}Ra$ et de ses descendants / 26 7



-les transitions de gauche sont les transitions α.
-les transitions de droite sont les transitions β.
-les énergies sont exprimées en keV.

Annexe 1 (suite)

A_{1-4} - Table des exponentielles

Temps mn	Radon		RaA		RaB		RaC	
	$e^{-\lambda_1 t}$	$1-e^{-\lambda_1 t}$	$e^{-\lambda_2 t}$	$1-e^{-\lambda_2 t}$	$e^{-\lambda_3 t}$	$1-e^{-\lambda_3 t}$	$e^{-\lambda_4 t}$	$1-e^{-\lambda_4 t}$
1	0,999874	$1,26.10^{-4}$	0,7965	0,2035	0,9744	$2,56.10^{-2}$	0,9654	0,0346
2	0,999748	$2,52.10^{-4}$	0,6345	0,3655	0,9495	$5,05.10^{-2}$	0,932	$6,8.10^{-2}$
3	0,999622	$3,78.10^{-4}$	0,506	0,494	0,9253	$7,47.10^{-2}$	0,8995	0,1005
5	0,99937	$6,3.10^{-4}$	0,321	0,679	0,879	0,121	0,8385	0,1615
7	0,999118	$8,82.10^{-4}$	0,204	0,796	0,834	0,166	0,782	0,218
10	0,99874	$1,26.10^{-3}$	0,103	0,897	0,772	0,228	0,703	0,297
15	0,99811	$1,89.10^{-3}$	0,033	0,967	0,678	0,322	0,590	0,410
20	0,99748	$2,52.10^{-3}$	$1,1.10^{-2}$	0,989	0,596	0,404	0,494	0,506
25	0,99685	$3,15.10^{-3}$	$3,4.10^{-3}$	0,9966	0,523	0,477	0,414	0,586
30	0,99622	$3,78.10^{-3}$	$1,2.10^{-3}$	0,9988	0,460	0,540	0,348	0,652
40	0,99496	$5,04.10^{-3}$	$1,2.10^{-4}$	0,99988	0,355	0,645	0,244	0,756
50	0,99370	$6,3.10^{-3}$	$1,2.10^{-5}$	0,999988	0,274	0,726	0,17	0,828
60	0,99244	$7,56.10^{-3}$			0,212	0,788	0,121	0,879
70	0,99118	$8,82.10^{-3}$			0,164	0,836	$8,5.10^{-2}$	0,915
90	0,9887	$1,13.10^{-2}$			$9,75.10^{-2}$	0,9025	$4,2.10^{-2}$	0,958
120	0,9850	$1,5.10^{-2}$			$4,5.10^{-2}$	0,955	$1,46.10^{-2}$	0,9854
150	0,9813	$1,87.10^{-2}$			$2,05.10^{-2}$	0,9795	$5,05.10^{-3}$	0,99495
180	0,9776	$2,24.10^{-2}$			$9,5.10^{-3}$	0,9905	$1,8.10^{-3}$	0,9982
180	0,9739	$2,61.10^{-2}$			$4,4.10^{-3}$	0,9956	$6,15.10^{-4}$	0,999385
240	0,9702	$2,98.10^{-2}$			2.10^{-3}	0,998	$2,1.10^{-4}$	0,99979
270	0,9655	$3,45.10^{-2}$			$9,2.10^{-4}$	0,99908	$7,5.10^{-5}$	0,999925
300	0,9629	$3,71.10^{-2}$			$4,2.10^{-4}$	0,99958		
330	0,9592	$4,08.10^{-2}$			$1,95.10^{-5}$	0,999805		

ANNEXE II

Formulaire

1 - Formules générales d'évolution d'une filiation.

(A_1)

$$N_1(t) = \frac{n_1}{\lambda_1} + J_1 e^{-\lambda_1 t}$$

$$N_2(t) = \frac{n_1+n_2}{\lambda_2} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1} J_1 e^{-\lambda_1 t} + J_2 e^{-\lambda_2 t}$$

$$N_3(t) = \frac{n_1+n_2+n_3}{\lambda_3} + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3-\lambda_1)(\lambda_2-\lambda_1)} J_1 e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_2}{\lambda_3-\lambda_2} J_2 e^{-\lambda_2 t} + J_3 e^{-\lambda_3 t}$$

$$N_n(t) = \frac{n_1+n_2+n_3+\cdots\cdots+n_n}{\lambda_n} + \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \cdots\cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_n-\lambda_1)\cdots\cdots(\lambda_3-\lambda_1)(\lambda_2-\lambda_1)} J_1 e^{-\lambda_1 t}$$

$$+ \frac{\lambda_2 \lambda_3 \cdots\cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_n-\lambda_2)\cdots\cdots(\lambda_4-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)} J_2 e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_3 \lambda_4 \cdots\cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_n-\lambda_3)\cdots\cdots(\lambda_4-\lambda_3)} J_3 e^{-\lambda_3 t}$$

$$+ \cdots\cdots + \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_n-\lambda_{n-1}} J_{n-1} e^{-\lambda_{n-1} t} + J_n e^{-\lambda_n t}$$

$J_1, J_2, J_3 \cdots\cdots J_n$ ont pour valeur

$$J_1 = \left(N_1(0) - \frac{n_1}{\lambda_1}\right)$$

$$J_2 = N_2(0) - \frac{n_1+n_2}{\lambda_2} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2-\lambda_1} J_1$$

$$J_3 = N_3(0) - \frac{n_1+n_2+n_3}{\lambda_3} - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3-\lambda_2)(\lambda_2-\lambda_1)} J_1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_3-\lambda_2} J_2$$

$$J_n = N_n(0) - \frac{n_1 + n_2 + n_3 + n_4 + \cdots + n_n}{\lambda_n} - \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4 \cdots \lambda_n}{(\lambda_n - \lambda_1) \cdots (\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_1)} J_1$$

$$- \frac{\lambda_2 \lambda_3 \cdots \lambda_{(n-1)}}{(\lambda_n - \lambda_2) \cdots (\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} J_2 - \frac{\lambda_{(n-2)}\ \lambda_{(n-1)}}{(\lambda_n - \lambda_{(n-2)})(\lambda_{(n-1)} - \lambda_{(n-2)})} J_{(n-2)}$$

$$- \frac{\lambda_{(n-1)}}{\lambda_n - \lambda_{(n-1)}} J_{(n-1)}$$

En faisant $t = \infty$ dans les formules précédentes nous obtenons:

(A_2)

$N_{1\infty} = \frac{n_1}{\lambda_1} = \frac{n_1 T_1}{0{,}693}$
$N_{2\infty} = \frac{n_1 + n_2}{\lambda_2} = \frac{(n_1 + n_2) T_2}{0{,}693}$
$N_{3\infty} = \frac{n_1 + n_2 + n_3}{\lambda_3} = \frac{(n_1 + n_2 + n_3) T_3}{0{,}693}$
— — — — — — — — — — — — — — — —
$N_{n\infty} = \frac{n_1 + n_2 + n_3 + \cdots + n_n}{\lambda_n} = \frac{(n_1 + n_2 + n_3 + \cdots + n_n) T_n}{0{,}693}$

2 - Formules d'évolution sur filtre fixe

2-1. - Cas de non équilibre de la filiation dans l'atmosphère

2.1.1. - écriture en fonction des concentrations en atomes

Equations générales

(A_3)

$F_2(t) = \frac{Q_2 D}{\lambda_2}(1 - e^{-\lambda_2 t})$
$F_3(t) = \frac{Q_2 D}{\lambda_3 - \lambda_2}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + \left[\frac{\lambda_2 Q_2 D}{\lambda_3(\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{Q_3 D}{\lambda_3}\right](1 - e^{-\lambda_3 t})$
$F_4(t) = \frac{\lambda_3 Q_2 D}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + \left[\frac{\lambda_2 Q_2 D}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{Q_3 D}{\lambda_4 - \lambda_3}\right](1 - e^{-\lambda_3 t})$ $+ \left[\frac{\lambda_2 \lambda_3 Q_2 D}{\lambda_4(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)} + \frac{\lambda_3 Q_3 D}{\lambda_4(\lambda_3 - \lambda_4)} + \frac{Q_4 D}{\lambda_4}\right](1 - e^{-\lambda_4 t})$

Valeurs à saturation du filtre

$$(A_4)\qquad \begin{aligned} F_{2\infty} &= \frac{f_2}{\lambda_2} = \frac{Q_2 D}{\lambda_2} \\ F_{3\infty} &= \frac{f_2+f_3}{\lambda_3} = \frac{(Q_2+Q_3) D}{\lambda_3} \\ F_{4\infty} &= \frac{f_2+f_3+f_4}{\lambda_4} = \frac{(Q_2+Q_3+Q_4) D}{\lambda_4} \end{aligned}$$

Formules déduites de A_3 et A_4

$$(A_5)\qquad \begin{aligned} F_2(t) &= F_{2\infty}\,(1-e^{-\lambda_2 t}) \\ F_3(t) &= F_{3\infty}\left[\frac{\lambda_3 Q_2}{(\lambda_3-\lambda_2)(Q_2+Q_3)}(1-e^{-\lambda_2 t}) + \frac{\lambda_2(Q_2+Q_3)-\lambda_3 Q_3}{(\lambda_2-\lambda_3)(Q_2+Q_3)}(1-e^{-\lambda_3 t})\right] \\ F_4(t) &= F_{4\infty}\left[\frac{\lambda_3\lambda_4 Q_2}{(\lambda_4-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)(Q_2+Q_3+Q_4)}(1-e^{-\lambda_2 t})\right. \\ &+ \frac{\lambda_2\lambda_4(Q_2+Q_3)-\lambda_3\lambda_4 Q_3}{(\lambda_4-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)(Q_2+Q_3+Q_4)}(1-e^{-\lambda_3 t}) \\ &+ \left.\frac{\lambda_2\lambda_3(Q_2+Q_3+Q_4)-\lambda_3\lambda_4(Q_3+Q_4)+\lambda_4(\lambda_4-\lambda_3)Q_4}{(\lambda_3-\lambda_4)(\lambda_2-\lambda_4)(Q_2+Q_3+Q_4)}(1-e^{-\lambda_4 t})\right] \end{aligned}$$

2.1.2. - ecriture en fonction des facteurs de déséquilibre

Equations générales

$$(A_6)\qquad \begin{aligned} F_2(t) &= \lambda_1 Q_1 D\,\frac{q_2}{\lambda_2^2}\,(1-e^{-\lambda_2 t}) \\ F_3(t) &= \lambda_1 Q_1 D\left[\frac{q_2}{\lambda_2(\lambda_3-\lambda_2)}(1-e^{-\lambda_2 t}) + \left(\frac{q_2}{\lambda_3(\lambda_2-\lambda_3)} + \frac{q_3}{\lambda_3^2}\right)(1-e^{-\lambda_3 t})\right] \\ F_4(t) &= \lambda_1 Q_1 D\left[\frac{\lambda_3 q_2}{\lambda_2(\lambda_4-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)}(1-e^{-\lambda_2 t}) + \left[\frac{q_2}{(\lambda_4-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)} + \frac{q_3}{\lambda_3(\lambda_4-\lambda_3)}\right](1-e^{-\lambda_3 t})\right. \\ &+ \left.\left[\frac{\lambda_3 q_2}{\lambda_4(\lambda_3-\lambda_4)(\lambda_2-\lambda_4)} + \frac{q_3}{\lambda_4(\lambda_3-\lambda_4)} + \frac{q_4}{\lambda_4^2}\right](1-e^{-\lambda_4 t})\right] \end{aligned}$$

Valeurs à saturation du filtre

$$F_{2\infty} = \frac{f_2}{\lambda_2} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2^2} q_2 Q_1 D = F_{1\infty} q_2 \frac{\lambda_1^2}{\lambda_2^2}$$

$$F_{3\infty} = \frac{f_2 + f_3}{\lambda_3} = \frac{\lambda_1 Q_1 D(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3)}{\lambda_2 \lambda_3^2} = F_{1\infty} \frac{\lambda_1^2(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3)}{\lambda_2 \lambda_3^2}$$

(A_7)

$$F_{4\infty} = \frac{f_2 + f_3 + f_4}{\lambda_4} = \frac{\lambda_1 Q_1 D\left[\lambda_4(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3) + \lambda_2 \lambda_3 q_4\right]}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_4^2}$$

$$= F_{1\infty} \frac{\lambda_1^2\left[\lambda_4(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3) + \lambda_2 \lambda_3 q_4\right]}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_4^2}$$

Formules déduites de A_6 et A_7

$$F_2(t) = F_{2\infty}\left(1 - e^{-\lambda_2 t}\right)$$

$$F_3(t) = F_{3\infty}\left[\frac{\lambda_3^2 q_2}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3)}\left(1 - e^{-\lambda_2 t}\right) + \frac{\lambda_2 \lambda_3 (q_2 - q_3) + \lambda_2^2 q_3}{(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3)}\left(1 - e^{-\lambda_3 t}\right)\right]$$

(A_8)

$$F_4(t) = F_{4\infty}\left[\frac{\lambda_3^2 \lambda_4^2 q_2}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)\left[\lambda_4(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3) + \lambda_2 \lambda_3 q_4\right]}\left(1 - e^{-\lambda_2 t}\right)\right.$$

$$+ \frac{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_4^2 (q_2 - q_3) + \lambda_2^2 \lambda_4^2 q_3}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)\left[\lambda_4(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3) + \lambda_2 \lambda_3 q_4\right]}\left(1 - e^{-\lambda_3 t}\right)$$

$$\left. + \frac{\lambda_2 \lambda_3^2 \lambda_4 (q_2 - q_4) + \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4 (\lambda_2 - \lambda_4)(q_3 - q_4) + \lambda_2^2 \lambda_3^2 q_4}{(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)\left[\lambda_4(\lambda_3 q_2 + \lambda_2 q_3) + \lambda_2 \lambda_3 q_4\right]}\left(1 - e^{-\lambda_4 t}\right)\right]$$

2-2. - Cas de l'équilibre radioactif de la filiation dans l'atmosphère

Valeurs à saturation du filtre

$$F_{2eq\infty} = \frac{f_2}{\lambda_2} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2^2} Q_1 D = F_{1\infty} \frac{\lambda_1^2}{\lambda_2^2}$$

$$F_{3eq\infty} = \frac{f_2 + f_3}{\lambda_3} = \frac{\lambda_1 Q_1 D(\lambda_2 + \lambda_3)}{\lambda_2 \lambda_3^2} = F_{1\infty} \frac{\lambda_1^2(\lambda_2 + \lambda_3)}{\lambda_2 \lambda_3^2}$$

(A_9)

$$F_{4eq\infty} = \frac{f_2 + f_3 + f_4}{\lambda_4} = \frac{\lambda_1 Q_1 D\left[\lambda_4(\lambda_2 + \lambda_3)\lambda_2 \lambda_3\right]}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_4^2}$$

$$= F_{1\infty} \frac{\lambda_1^2\left[\lambda_4(\lambda_2 + \lambda_3) + \lambda_2 \lambda_3\right]}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_4^2}$$

Formules déduites de A_9

(A_{10})

$$F_2(t) = F_{2eq\infty}\,(1-e^{-\lambda_2 t})$$

$$F_3(t) = F_{3eq\infty}\left[\frac{\lambda_3^2}{\lambda_3^2-\lambda_2^2}\,(1-e^{-\lambda_2 t}) + \frac{\lambda_2^2}{\lambda_2^2-\lambda_3^2}\,(1-e^{-\lambda_3 t})\right]$$

$$F_4(t) = F_{4eq\infty}\left[\frac{\lambda_2^2\,\lambda_3^2\,\lambda_4^2}{(\lambda_4-\lambda_3)(\lambda_4-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)\left[\lambda_4(\lambda_2+\lambda_3)+\lambda_2\,\lambda_3\right]}\right.$$

$$\left.\left[\frac{\lambda_4-\lambda_3}{\lambda_2^2}\,(1-e^{-\lambda_2 t}) + \frac{\lambda_2-\lambda_4}{\lambda_3^2}\,(1-e^{-\lambda_3 t}) + \frac{\lambda_3-\lambda_2}{\lambda_4^2}\,(1-e^{-\lambda_4 t})\right]\right]$$

2.3.- Formules de décroissance

(A_{11})

$$F_2(\theta) = F_2(t,0)\;e^{-\lambda_2\theta}$$

$$F_3(\theta) = F_2(t,0)\;\frac{\lambda_2}{\lambda_3-\lambda_2}\,(e^{-\lambda_2\theta}-e^{-\lambda_3\theta}) + F_3(t,0)\;e^{-\lambda_3\theta}$$

$$F_4(\theta) = \lambda_2\lambda_3 F_2(t,0)\left[\frac{e^{-\lambda_2\theta}}{(\lambda_4-\lambda_2)(\lambda_3-\lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3\theta}}{(\lambda_4-\lambda_3)(\lambda_2-\lambda_3)} + \frac{e^{-\lambda_4\theta}}{(\lambda_3-\lambda_4)(\lambda_2-\lambda_4)}\right]$$

$$+ \frac{\lambda_3}{\lambda_4-\lambda_3}\,F_3(t,0)\,(e^{-\lambda_3\theta}-e^{-\lambda_4\theta}) + F_4(t,0)\,e^{-\lambda_4\theta}$$

3 - Formules de calcul des activités déposées sur un filtre fixe

3-1.- Activité du filtre à l'arrêt du prélèvement

3.1.1.- Cas Général

Ecriture en fonction des concentrations en atomes.
Pour chaque descendant

(A_{12})

$$\mathcal{F}_2(t) = 2{,}778.10^{-4}\,Q_2 DR_d\,R_f\,(1-e^{-\lambda_2 t}) = 2{,}778.10^{-4}\,Q_2\,k_{Aeq}DR_d\,R_f$$

$$\mathcal{F}_3(t) = 2{,}778.10^{-4}\,DR_d\,R_f\left[1{,}284.10^{-2}Q_2\,(1-e^{-\lambda_2 t}) + (1{,}128\,Q_2 + Q_3)(1-e^{-\lambda_3 t})\right]$$

$$\mathcal{F}_4(t) = 2{,}778.10^{-4}\,DR_d\,R_f\left[2{,}352.10^{-2}Q_2\,(1-e^{-\lambda_2 t}) + (4{,}259\,Q_2 + 3{,}775\,Q_3)(1-e^{-\lambda_3 t})\right.$$

$$\left.+(-3{,}283\,Q_2 - 2{,}775\,Q_3 + Q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right]$$

Comptage α

$$\mathcal{F}_\alpha(t) = 2{,}778.10^{-4} DR_d R_f \left[1{,}0235 Q_2 (1-e^{-\lambda_2 t}) + (4{,}259 Q_2 + 3{,}775 Q_3)(1-e^{-\lambda_3 t}) + (-3{,}283 Q_2 - 2{,}775 Q_3 + Q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right] \quad (A_{13})$$

Comptage β

$$\mathcal{F}_\beta(t) = 2{,}778.10^{-4} DR_d R_f \left[3{,}637.10^{-2} Q_2 (1-e^{-\lambda_2 t}) + (5{,}388 Q_2 + 3{,}775 Q_3)(1-e^{-\lambda_3 t}) + (-3{,}283 Q_2 - 2{,}775 Q_3 + Q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right] \quad (A_{14})$$

Ecriture en fonction des facteurs de déséquilibre.

Pour chaque descendant.

$$\mathcal{F}_2(t) = 0{,}271.10^{10} q_2 C_1 DR_d R_f (1-e^{-\lambda_2 t}) = 0{,}271.10^{10} q_2 C_1 k_{Aeq} DR_d R_f$$

$$\mathcal{F}_3(t) = 6{,}167.10^{8} C_1 DR_d R_f \left[-0{,}565 q_2 (1-e^{-\lambda_2 t}) + (4{,}966 q_2 + 38{,}672 q_3)(1-e^{-\lambda_3 t})\right] \quad (A_{15})$$

$$\mathcal{F}_4(t) = 6{,}167.10^{8} C_1 DR_d R_f \left[0{,}1035 q_2 (1-e^{-\lambda_2 t}) + (18{,}746 q_2 + 145{,}975 q_3)(1-e^{-\lambda_3 t}) + (-14{,}449 q_2 - 107{,}302 q_3 + 28{,}427 q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right]$$

Comptage α

$$\mathcal{F}_\alpha(t) = 27{,}738.10^{8} C_1 DR_d R_f q_2 (1-e^{-\lambda_2 t}) + 6{,}167.10^{8} C_1 DR_d R_f \left[(18{,}746 q_2 + 145{,}975 q_3)(1-e^{-\lambda_3 t}) + (-14{,}449 q_2 - 107{,}302 q_3 + 28{,}427 q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right] \quad (A_{16})$$

Comptage β

$$\mathcal{F}_\beta(t) = 6{,}167.10^{8} C_1 DR_d R_f \left[-0{,}4615 (1-e^{-\lambda_2 t}) + (23{,}712 q_2 + 184{,}647 q_3)(1-e^{-\lambda_3 t}) + (-14{,}449 q_2 - 107{,}302 q_3 + 28{,}427 q_4)(1-e^{-\lambda_4 t})\right] \quad (A_{17})$$

3.1.2.- Cas de l'équilibre radioactif de la filiation dans l'atmosphère

Pour chaque descendant

$$(A_{18}) \quad \begin{cases} \mathcal{F}_{2eq}(t) = 0{,}271.10^{10}\, k_{Aeq} C_1 DR_d R_f \\ \mathcal{F}_{3eq}(t) = 2{,}656.10^{10}\, k_{Beq} C_1 DR_d R_f \\ \mathcal{F}_{4eq}(t) = 4{,}409.10^{10}\, k_{Ceq} C_1 DR_d R_f \end{cases}$$

Comptage α

$$(A_{19}) \quad \mathcal{F}_{\alpha eq}(t) = (0{,}271\, k_{Aeq} + 4{,}409\, k_{Ceq})\, 10^{10} C_1 DR_d R_f$$

Comptage β

$$(A_{20}) \quad \mathcal{F}_{\beta eq}(t) = (2{,}656\, k_{Beq} + 4{,}409\, k_{Ceq})\, 10^{10} C_1 DR_d R_f$$

3-2.- Activité sur le filtre après l'arrêt du prélèvement

pour chaque descendant

$$(A_{21}) \quad \begin{cases} A_2 = \lambda_2 F_2(\theta) = 0{,}227\, F_2(t,0)\, e^{-\lambda_2 \theta} \\ A_3 = \lambda_3 F_3(\theta) = -2{,}918.10^{-2} F_2(t,0)\, e^{-\lambda_2 \theta} + \left[2{,}918 F_2(t,0) + 2{,}586 F_3(t,0)\right] 10^{-2} e^{-\lambda_3 \theta} \\ A_4 = \lambda_4 F_4(\theta) = 5{,}345.10^{-3} F_2(t,0) e^{-\lambda_2 \theta} + \left[0{,}1101 F_2(t,0) + 9{,}761.10^{-2} F_3(t,0)\right] e^{-\lambda_3 \theta} \\ \qquad + \left[-0{,}1155\, F_2(t,0) - 9{,}761.10^{-2}\, F_3(t,0) + 3{,}518.10^{-2} F_4(t,0)\right] e^{-\lambda_4 \theta} \end{cases}$$

Activité α

$$(A_{22}) \quad A_\alpha(\theta) = 0{,}2326\, F_2(t,0)\, e^{-\lambda_2 \theta} + \left[0{,}1101\, F_2(t,0) + 9{,}761.10^{-3}\, F_3(t,0)\right] e^{-\lambda_3 \theta} + \left[-0{,}1155\, F_2(t,0) - 9{,}761.10\, F_3(t,0) + 3{,}518.10^{-2}\, F_4(t,0)\right] e^{-\lambda_4 \theta}$$

Activité β

$$(A_{23}) \quad A_\beta(\theta) = -2{,}383.10^{-2} F_2(t,0)\, e^{-\lambda_2 \theta} + \left[0{,}1393\, F_2(t,0) + 0{,}1235\, F_3(t,0)\right] e^{-\lambda_3 \theta} + \left[-0{,}1155\, F_2(t,0) - 9{,}761.10^{-2}\, F_3(t,0) + 3{,}518.10^{-2} F_4(t,0)\right] e^{-\lambda_4 \theta}$$

ANNEXE 3

LA PERTE D'ENERGIE ET LE STRAGGLING DES PARTICULES α DANS LA MATIERE

---

1 - LE POUVOIR D'ARRET MASSIQUE

L'inverse du pouvoir d'arrêt massique des particules α est une fonction linéaire de l'énergie [27]

$$\rho \frac{dr}{dE} = K_1 E + K_2 \qquad (1)$$

K_1 et K_2 sont deux constantes empiriques liées à la nature du milieu absorbant ρ.

L'intégration de l'équation (1) donne

$$R = \frac{K_1}{2} (E_0^2 - E^2) + K_2 (E_0 - E) \qquad (2)$$

E_0 est l'énergie initiale de la particule, E l'énergie à la sortie du milieu absorbant, R l'épaisseur traversée.

Si E = 0, R est alors égal au parcours maximal R_0 des particules α dans le milieu considéré.

$$R_0 = \frac{K_1}{2} E_0^2 + K_2 E_0 \qquad (3)$$

Les constantes K_1 et K_2 sont données pour l'air, par [27]

$$K_1 = 0{,}167 \text{ mg.cm}^{-2}.\text{MeV}^{-2}$$
$$K_2 = 0{,}450 \text{ mg.cm}^{-2}.\text{MeV}^{-1}$$

K_{1M} et K_{2M} relatives au milieu M sont évaluées en utilisant la règle de Bragg-Kleemann [28]

$$R_M = R_{air} \frac{\rho_{air}}{\rho_M} \sqrt{\frac{A_M}{A_{air}}} \qquad (4)$$

R_M et R_{air} sont en $mg.cm^{-2}$.

$$K_{1M} = K_{1\ air} \sqrt{\frac{A_M}{A_{air}}}$$

$$K_{2M} = K_{2\ air} \sqrt{\frac{A_M}{A_{air}}}$$

ρ_M et ρ_{air} sont les masses volumiques en $g.dm^{-3}$ du milieu M et de l'air.

A_M et A_{air} sont les masses atomiques moyennes du milieu M et de l'air, calculées dans le cas des composés ou mélanges par la relation suivante [28].

$$A_M = \sum_i \frac{n_i A_i}{n_i \sqrt{A_i}} \qquad (6)$$

n_i est la fraction atomique de l'élément i dont la masse atomique est A_i.

Exemple :

Formule de la cellulose $(C_6 H_{10} O_5)_n$

$A_C = 12 \qquad A_H = 1 \qquad A_O = 16$

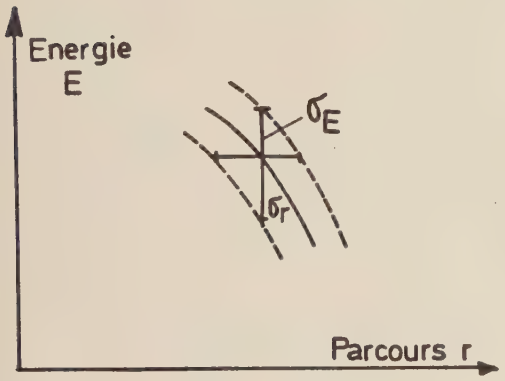
$$A_{cell} = \frac{(6/21 \times 12) + (10/21 \times 1) + (5/21 \times 16)}{6/21 \sqrt{12} + 10/21 \sqrt{1} + 5/21 \sqrt{16}} = 3,20$$

$$A_{cell} = 10,24$$

2 - FLUCTUATIONS STATISTIQUES DE LA PERTE D'ENERGIE OU "STRAGGLING".

Toutes les particules α de même vitesse initiale n'ont pas, dans un matériau donné, le même parcours. Nous pouvons cependant considérer en première approximation que les valeurs de l'énergie résiduelle, après un parcours donné, se distribuent statistiquement autour d'une valeur moyenne suivant une loi normale. La variance en énergie σ_E^2 peut être calculée par la relation de BOHR [29] (figure A_1).

$$\sigma_E^2 = \left(\frac{dE}{dr}\right)^2 \int_E^{E_0} P \left(\frac{dE}{dr}\right)^{-3} dE \qquad (7)$$



E_0 est l'énergie initiale de la particule, E l'énergie moyenne résiduelle à laquelle on calcule σ_E

$\left(\frac{dE}{dr}\right)^2$ doit être évaluée à l'énergie E. P est appelé la variance de Bohr.

Figure A_1. Ecart quadratique moyen sur E ou r

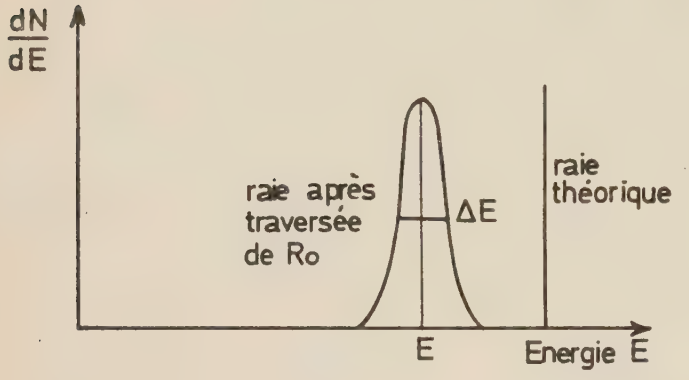
$$P_0 = 4 \pi z^2 e^4 NZ \qquad erg^2.cm^{-1} \qquad (8)$$

WILLIAMS et BETHE [30] proposent de calculer P par une relation de la forme:

$$P = P_0 \left[1 + \frac{4I}{3 m_0 V^2} \ln \left(\frac{2 m_0 V^2}{I}\right) \right] \quad erg^2.cm^{-1} \qquad (9)$$

P_0 est donné par (8) où ze est la charge de la particule, V sa vitesse, m_0 la masse de l'électron, N le nombre d'atomes par unité de volume du milieu absorbant de nombre atomique Z et d'énergie moyenne d'ionisation excitation I.

Le "straggling" peut être défini par la largeur à mi-hauteur ΔE de la gaussienne représentant la dispersion des énergies de sortie des alphas après un parcours donné (figure A2).



ΔE est liée à l'écart quadratique moyen σ_E par la relation

$$\Delta E = 2\sqrt{2\ln 2}\,\sigma_E = 2{,}354\,\sigma_E \qquad (10)$$

Figure A2 - Influence du straggling.

La figure A3 représente ΔE en fonction de l'épaisseur du milieu absorbant traversé respectivement pour les α de 6 et 7,68 MeV (descendants du radon: RaA et RaC') dans la membrane RAWP et l'air.

3 - ENERGIE MOYENNE D'EXCITATION IONISATION D'UN COMPOSE OU D'UN MELANGE

L'énergie moyenne $\bar{I}$ d'excitation ionisation d'un composé ou d'un mélange est égale à la moyenne logarithmique des I des différents constituants [31].

$$\ln I = \sum_k f_k \ln I_k \qquad (11)$$

$$f_k = \frac{\text{nombre d'électrons appartenant à des atomes k}}{\text{nombre total d'électrons dans le milieu}}$$

Pour les éléments dont la valeur de I n'est pas connue, le comité pour l'étude de la pénétration des particules chargées dans la matière [32] recommande l'emploi des relations suivantes dues à STERNHEIMER.

$$I/Z = 12 + \frac{7}{Z}\ \text{eV} \qquad (12\ a)\ I < 163\ \text{eV}$$

$$I/Z = 9{,}76 + 58{,}8\ Z^{-1{,}19} \qquad (12\ b)\ I \geq 163\ \text{eV soit } Z \geq 13$$

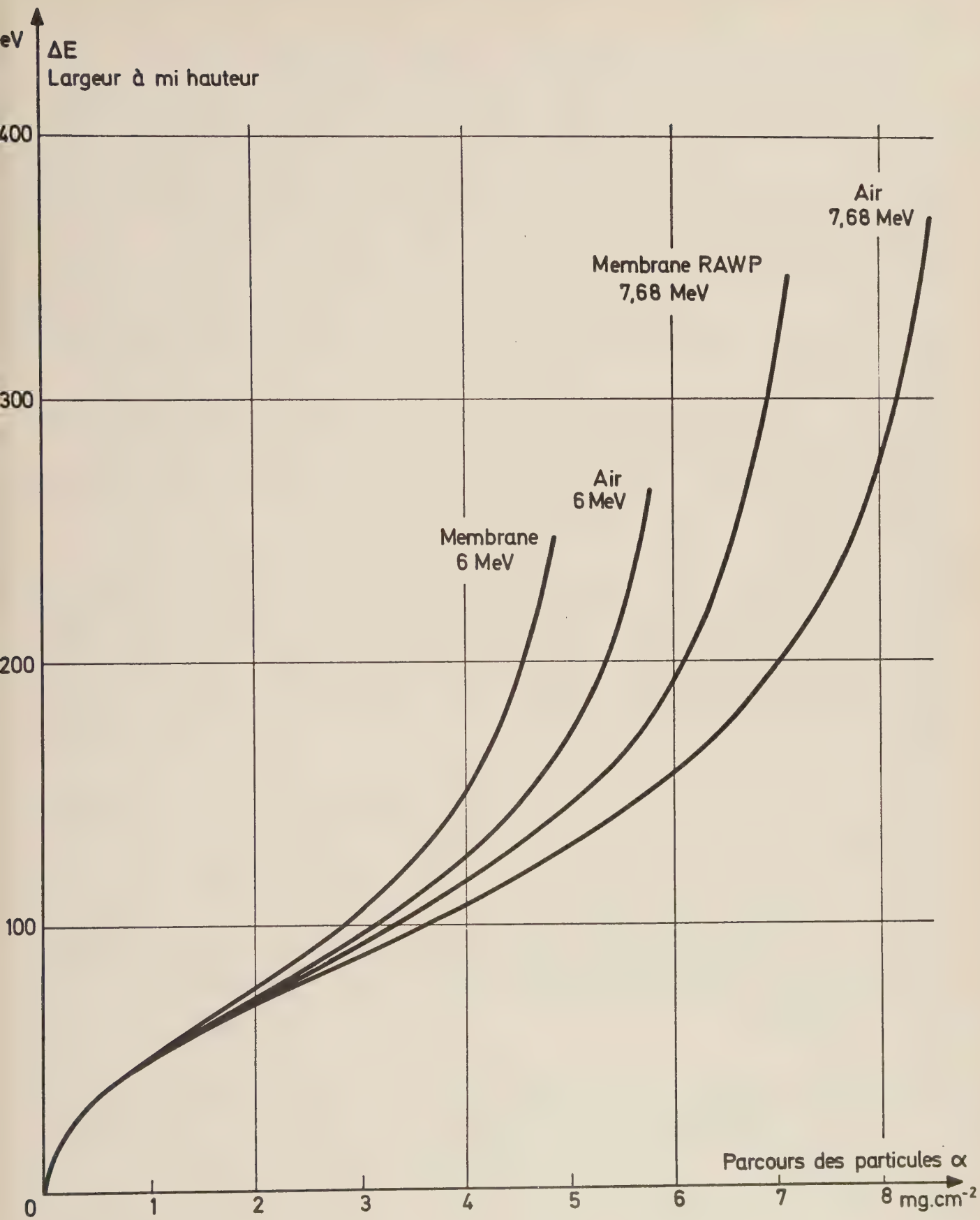


Fig. A_3 _ Straggling des particules α dans l'air et les membranes capillaires

La valeur moyenne du rapport $\frac{Z}{A}$ s'obtient par la relation

$$\frac{Z}{A} = \sum_k f_k \frac{Z_K}{A_K} \qquad (13)$$

En référence [32] nous trouvons des valeurs du potentiel d'excitation ionisation appelées I ou I_{adj}. Ces deux valeurs sont liées par les relations.

$$\ln I_{adj} = \ln I + \left(\frac{C}{Z}\right)_{\beta = 1} \quad \text{et} \quad \ln I + \frac{C}{Z} = \ln I_{adj} + \frac{C_{adj}}{Z} \qquad (14)$$

C'est une correction due à l'influence des électrons des atomes du milieu traversé. Cette correction prend de l'importance lorsque la vitesse orbitale des électrons du milieu devient de l'ordre de grandeur de la vitesse V des particules α.

C_{adj} et I_{adj} sont des valeurs de C et I corrigées pour tenir compte des résultats des récentes études de C. C prend une valeur finie lorsque β tend vers 1, alors que dans les théories précédentes C était supposé s'annuler pour β = 1. (on rappelle $\beta = \frac{V}{C}$, c étant la vitesse de la lumière).

4 - APPLICATION AUX MEMBRANES ET FILTRES SCHNEIDER POELMAN

Les membranes capillaires sont composées d'acétates ou d'esters de cellulose purs.

Les filtres Schneider Poelman sont constitués de fibres d'alpha entrelacées et d'une proportion d'amiante variable en pourcentage suivant le type de filtre (maximum 15 % en masse pour le filtre rose étudié).

Membrane capillaire

La membrane RAWP présente une porosité de 82 % environ.

- masse surfacique moyenne mesurée : 4,2 mg.cm^{-2}
- épaisseur moyenne mesurée : 150 ± 15 µm
- masse volumique moyenne : 0,28 g.cm^{-3}

Dans 1 cm^3 de membrane il y a donc :

cellulose pure $\frac{0,28}{1,44} = 0,195$ ($\bar{\rho}_{cell} = 1,44$ g.cm^{-3})

air $1 - \frac{0,28}{1,44} = 0,805$ soit $\simeq 0,5$ % du poids.

nous retrouvons la porosité.

Conclusion

Nous assimilons les membranes capillaires à de la cellulose pure de masse volumique moyenne 0,28 g.cm^{-2}.

Filtre rose

- masse volumique moyenne : 0,37 g.cm^{-3} (mesurée)

Dans 1 cm^3 de filtre il y a $\frac{0,37}{1,44}$ fraction de cellulose pure et $1 - \frac{0,37}{1,44}$ fraction d'air, soit une masse d'air d'environ 0,3 % de la masse totale.

Conclusion

Un filtre rose est assimilé à de la cellulose pure de masse volumique moyenne 0,37 g.cm^{-3}.

Calcul du nombre d'électrons par cm^3 de membrane ou de filtre

Si N_{cell} est le nombre d'électrons par cm^3 dans la cellulose pure on écrit :

$$N_{membrane} = \frac{N_{cell} \times 0,28}{1,44} = \frac{4,6015.10^{23} \times 0,28}{1,44}$$

$$N_{membrane} = 8,9474.10^{22} \text{ électron.cm}^{-3}$$

$$N_{filtre} = \frac{4,6015.10^{23} \times 0,37}{1,44}$$

$$N_{filtre} = 1,1823.10^{23} \text{ électron.cm}^{-3}$$

L'énergie moyenne d'excitation ionisation d'une membrane ou d'un filtre rose est celle de la cellulose.

Formule 13 : $\frac{Z}{A}_{cell} = 0,499 \times \frac{36}{86} \times 0,992 \times \frac{10}{86} + \frac{40}{86} \times 0,5$

$$\frac{Z}{A}_{cell} = 0,5568$$

d'où $\bar{Z} = 10,24 \times 0,547 = 5,70$

$$Z_{cell} = 5,7$$

L'énergie moyenne d'excitation ionisation se calcule par les formules 11 ou 12 a. Il vient :

$$I_{cell} = 74 \text{ ev.}$$

5 - Répertoiredes principales grandeurs utilisées dans nos calculs

5.1. Grandeurs relatives à l'air

masse volumique à 0 °C et 760 mm Hg	1,2929 g.cm^{-3}	[33]
masse volumique à 15 °C et 760 mm Hg	1,225 g.cm^{-3}	[33]
masse atomique moyenne $\bar{A}$	14,59 g.mole^{-1}	[34]
nombre atomique moyen $\bar{Z}$	7,22	[34]
nombre de molécules par cm^3	2,54755.10^{19}	[33]
nombre d'électrons par cm^3 N (15 °C.760mmHg)	3,6787.10^{20}	calculé
proportions en poids des composants	0,755 N, 0.232 O, 0,013 A	[34]
volume molaire à 15 °C, 760 mm Hg	23645,444 cm^3	[33]

5.2. Grandeurs relatives à la cellulose

formule $(C_6 H_{10} O_5)_n$ [33]

masse volumique de la cellulose	1,27 à 1,61	$g.cm^{-3}$	[33]
valeur moyenne utilisée	1,44	$g.cm^{-3}$	
nombre d'atomes par cm^{-3}	$8,0728.10^{22}$		calculé
nombre d'électrons par cm^3	$4,6015.10^{23}$		calculé
masse atomique moyenne $\bar{A}_{cell}$	3,20		calculée
numéro atomique moyen $\bar{Z}_{cell}$	5,7		calculé
$\frac{\bar{Z}}{\bar{A}}$ cell moyen	0,5568		calculé
$I_{adj.cell}$	74 eV		calculé

5.3. Grandeurs diverses

nombre d'Avogadro $6,02486.10^{23}$ atomes [33]

	C	H	O	
masse atomique	12,011	1,008	16	[33] [33]
numéro atomique	6	1	8	[33]
(Z/A)	0,499	0,992	0,5	[33]
I_{adj}	78	18	96	[34]
masse volumique 0° C 760 mm Hg	2,25	1,429	1,429	[33]

masse volumique de l'argon	1,7837	[33]
masse volumique de l'azote N_2	1,25055	[33]
masse volumique de l'azote atmosphérique	1,2568	[33]
nombre d'électron par cm^3 de membrane	$8,9474.10^{22}$	calculé
nombre d'électon par cm^3 de filtre rose	$1,6823.10^{23}$	calculé
masse volumique de la membrane	0,28 $g.cm^{-3}$	mesurée
masse volumique du filtre rose	0,37 $g.cm^{-3}$	mesurée
masse atomique de l'argon	39,944	
masse atomique de l'azote	14,008	
numéro atomique de l'argon	18	
numéro atomique de l'azote	7	

ANNEXE 4

RESOLUTION ELECTRONIQUE DES DETECTEURS A SEMI-CONDUCTEUR

Par définition on appelle résolution d'un spectromètre le rapport

$$\rho = \frac{\Delta V}{\bar{V}}$$

ΔV est la largeur à mi-hauteur du pic d'absorption totale et $\bar{V}$ la hauteur moyenne des impulsions. ρ est sans dimension.

En spectrométrie par détecteur à semi-conducteur, il est fréquent dans la littérature d'appeler résolution des largeurs ΔV exprimées en keV. Nous allons rappeler brièvement ces deux grandeurs.

Une particule d'énergie E qui perd toute son énergie dans le volume sensible du compteur créé N paires électron-trous.

$$N = \frac{E}{w} \qquad (2)$$

d'où une charge $q = Ne$

w est l'énergie moyenne nécessaire pour créer une paire électron-trou.

Le nombre de porteurs varie statistiquement, la variance étant supposée suivre une distribution de Poisson. La résolution ρ s'écrit : (écart quadratique moyen σ_q) $\angle$ 35 7.

$$\rho = \frac{2{,}35\,\sigma_q}{\bar{q}} = \frac{2{,}35}{N} = 2{,}35\left(\frac{w}{E}\right)^{1/2} \qquad (3)$$

à $\bar{q}$ correspond $\bar{V} = \frac{\bar{q}}{C}$ où C est la capacité équivalente du détecteur et des circuits associés.

exemple : pour le silicium $w = 3,6$ eV , si $E = 1$ MeV

$$\rho = 0,45$$

La largeur ΔV exprimée en keV s'écrit :

$$V = L_{(FWHM)} = 2,35 \quad = 2,35 \frac{\sigma_q w}{e} = 2,35 \, (Ew)^{1/2} \qquad (4)$$

(FWHM) = abréviation de l'expression anglaise : the Full Width at Half Maximum.

Si les fluctuations du nombre de charges ne suivent pas la loi de Poisson, la largeur (FWHM) devient [36 7:

$$L_{FWHM} = 2,35 \, (FEw)^{1/2} \qquad (5)$$

F est le facteur de Fano (<1)

La résolution électronique d'un spectromètre à semi-conducteur se compose en réalité de deux termes principaux :

- la résolution ρ_1 due aux fluctuations statistiques du nombre de charges créées dans l'espace sensible du compteur ;
- la résolution ρ_2 due au bruit électronique apporté par le détecteur et le circuit du préamplificateur associé.

$$\rho = \left(\sum_i \rho_i^2 \right)^{1/2} = \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2} \qquad (6)$$

Pratiquement la largeur L s'exprime simplement. Elle s'obtient à partir d'un sélecteur d'amplitude et d'un générateur d'impulsions préalablement étalonnés en énergie. Au pic correspondant à l'énergie du radionucléide étudié, nous substituons le pic dû à l'impulsion d'amplitude équivalente (détecteur en circuit). La largeur L est lue directement sur la raie ainsi obtenue.

Nous avons obtenu 90 keV de largeur avec le détecteur à semi-conducteur du type barrière de surface de notre spectromètre (surface utile 9,5 cm^2 - capacité équivalente 820 pF. constante de temps des circuits amplificateurs = τ intégrateur = τ différentiateur = 3.10^{-6} s. polarisation du détecteur + 50 V).

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé

Toulouse, le 29 décembre 1969

Le Président du Conseil Transitoire

De la Faculté des Sciences de Toulouse

F. MATHIS